MASSENBILANZIERUNG EINER WIRBELSCHICHTGRANULIERUNG

DISSERTATION

zur Erlangung des

NATURWISSENSCHAFTLICHEN DOKTORGRADES

der

BAYERISCHEN JULIUS-MAXIMILIANS-UNIVERSITÄT
WÜRZBURG

vorgelegt von

ULF KÖSTER

AUS MELSUNGEN

WÜRZBURG 2001

ULF KÖSTER

APOTHEKER UND HAUPTMANN D.R.

GARTENSTRAßE 15

34212 MELSUNGEN

Graphische Gestaltung, Satz und Druck: U. Köster

Massenbilanzierung einer Wirbelschichtgranulierung

Dissertation

zur Erlangung des

Naturwissenschaftlichen Doktorgrades

der

Bayerischen Julius-Maximilians-Universität
Würzburg

vorgelegt von

Ulf Köster

aus Melsungen

Würzburg 2001

Eingereicht am..................................:

bei der Fakultät für Chemie und Pharmazie

1. Gutachter......................................:

2. Gutachter......................................:

der Dissertation

1. Prüfer...:

2. Prüfer...:

3. Prüfer...:

der mündlichen Prüfung

Tag der mündlichen Prüfung............:

Doktorurkunde ausgehändigt am......:

Widmung

Diese Arbeit ist folgenden Personen gewidmet:

meinen Eltern

den Mitgliedern der Lerngruppe, mit denen ich fünf Jahre einen erfolgreichen, gemeinsamen Weg gegangen bin

Frau Apothekerin Susanne Müller, geb. Lederer
Franken-Apotheke, Karlstadt

Herrn Apotheker Ulrich Willecke
Burg-Apotheke, Burgsinn

meinem militärischen Ziehvater, welcher mir erfolgsorientiertes Handeln sowie Durchhaltevermögen vermittelt hat und mir auch in extremen Stresssituationen immer Vorbild gewesen ist

Herrn Oberstleutnant i. G. und Diplom-Kaufmann
Dirk Waldau
G3 PzBrig 14 *„Hessischer Löwe“* Neustadt/Hessen

im Oktober 2001

Danksagung

Mein Dank gilt in besonderem Maße

- Herrn Prof. Dr. Ingfried Zimmermann für die interessante Themenstellung, die Freiheit in der Durchführung, die fachliche wie materielle Unterstützung der Arbeit, aber auch die wohlwollende Haltung gegenüber meinem Reserveoffiziersstatus mit den sich daraus ergebenen Forderungen sowie viele interessante Diskussionen auch abseits fachspezifischer Probleme

- Meinem Kollegen und Freund, Apotheker Kai Kretzler für die hervorragende Zusammenarbeit, die fachlichen sowie menschlichen Gespräche und die vielen lockeren Sprüche über manche Zeitgenoss*Inn*en

- Apothekerin Susanne Müller und Diplommathematiker Johannes Müller für viele schöne Stunden und zweckdienliche wie hilfreiche Diskussionen während der Promotionszeit sowie für das Korrekturlesen dieser Arbeit

- Den Mitarbeitern der Werkstatt Herr Georg Walter, Herr Karl Vollmuth und Herr Matthias Völker für die tatkräftige und unbürokratische Hilfe beim Transport der Maschine nach Dresden, dem Bau der Volumenstrommessstrecke sowie der Messzelle für den akustischen Feuchtesensor

- Dem Netzwerkadministrator Herrn Dr. Bernd Reyer für die Einbindung meines Laptops in das Computernetzwerk des Institutes sowie zahlreicher EDV-Improvisationen

- Den Mitgliedern des Arbeitskreises Frau Apothekerin Barbara Weh, Frau Apothekerin Dr. Felicitas Rief, Frau Apothekerin Kathrin Meyer, Frau Apothekerin Dr. Isabel Anstett, Frau Apothekerin Karin Marquardt, Herrn Apotheker Marcus Eber, Herrn Apotheker Christian Machon und Herrn Apotheker Sascha Zügner für die freundliche und kollegiale Zusammenarbeit bei der Betreuung der Studenten

- Der Sekretärin Frau Christine Schneider für die Unterstützung im täglichen Kampf mit der Bürokratie der Universitätsverwaltung

- Dem Praktikumsleiter Apotheker Dr. Hermann Walz für die hervorragende Organisation des Studentenpraktikums

- Herrn Prof. Dr.-Ing. S. Mickeler und Herrn Schwartz von der FH Schweinfurt für die excellente Unterstützung bei der Kalibrierung der Anlage

- Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. L. Zipser von der Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH) für Bereitstellung des akustischen Feuchtesensors und die intensive Betreuung der Messungen

- Herrn Diplomphysiker Dr. Oliver Rudow für viele hilfreiche Tips zur Organisation eines Promotionsverfahrens

- Herrn Diplommathematiker und Diplominformatiker Detlef Pabst für die Besprechung der Integrationsrechnungen

- Den Herren Meier, Kaiser, Löffler, Sprich von Glatt Process Technology GmbH (Binzen) sowie den Herren Kegel und Paulusch von Glatt Systemtechnik GmbH (Dresden) für die gute fachliche wie menschliche Zusammenarbeit

- Herrn Diplomphysiker Haberstroh von der Firma Hygrocontrol GmbH (Hanau) für zahlreiche Informationen zum Thema Feuchtemessung in Gasen und die stets freundliche Zusammenarbeit

- Meiner Schwester Daniela Köster M.A. und meinen Eltern für das Korrekturlesen dieser Arbeit

- Frau Claudia Gerig vom Biologiezentrum der Universität Würzburg für die Hilfe bei der Aufnahme der REM-Bilder

Folgenden Firmen danke ich für die großzügige Unterstützung dieser Arbeit durch Geräte und Muster:

Glatt GmbH, Binzen

Fujitsu Siemens Computers, Erlangen

Hygrocontrol GmbH, Hanau

Malvern GmbH, Herrenberg

Meggle GmbH, Wasserburg

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis

ASHRAE	American Society of Heating, Refrigerating and Air Conditioning Engineers
CCD	Charge Coupled Device
CIP	Clean in Place
EuAB	Europäisches Arzneibuch 1997
GPM	Good Manufacturing Practice in the Manufacture and Quality Control of Drugs and Pharmaceutical Specialities
GPCG	Glatt Powder Coater Granulator 1.1 CN 6533
IR	Infrarot
KF	Karl-Fischer
KFR	Karl-Fischer-Reagenz
LiCl	Lithiumchlorid
LSA	Laserstreulichtanalyse
NIR	Nahinfrarot-Spektroskopie
NN	Normal-Null (Meereshöhe)
NT	Nachteil
PEG	Polyethylenglykol
PVP	Polyvinylpyrrolidon
rF	relative Feuchte
SAS	Statistisches Analyse System Softwarepaket Vol. 8.01
Upm	Umdrehungen pro Minute
VS	Volumenstrom
VT	Vorteil
WSG	Wirbelschichtgranulierung

Mathematische Symbole

A	Konstante
A_{Rohr}	Querschnittsfläche eines Rohres [m²]
$A_{Ström}$	Fläche Anströmboden [m²]
C	Integrationskonstante
C_0	Kapazität des Kondensators bei Vakuum zwischen den Platten [F]
c_{is}	Schallgeschwindigkeit [m/s]
C_{Mat}	Kapazität des Kondensators mit Material zwischen den Platten [F]
c_p	Spezifische isobare Wärmekapazität eines Gases [kJ/(kg·°C)]
d	Rohrinnendurchmesser [m]
D	Schergefälle [s⁻¹]
d_{HD}	Durchmesser des Hitzdrahtes [m]
D[v; 0,5]	Medianwert der Partikelgrößenverteilung [µm]
f	Frequenz [Hz]
g	Erdbeschleunigung [9,81 m/s²]
h_D	Spezifische Enthalpie von Wasserdampf [kJ/kg]
h_{ges}	Spezifische Enthalpie feuchter Luft [kJ/kg]
h_{TL}	Spezifische Enthalpie trockener Luft [kJ/kg]
h_V	Spezifische Verdampfungsenthalpie von Wasser [kJ/kg]
h_W	Spezifische Enthalpie von Wasser [kJ/kg]
H_D	Enthalpie von Wasserdampf [kJ]
H_{ges}	Enthalpie feuchter Luft [kJ]
H_{TL}	Enthalpie trockener Luft [kJ]
k_S	(Äquivalente) Sandkornrauhigkeit [mm]
L	Länge [m]
L_{ein}	Einlaufstrecke [cm]
m	Masse [kg]
$\dot{m}$	Massenstrom der Komponente i [g/min]
M	Molare Masse [g/mol]
$m_{A,i}$	Durch Abluft im Zeitintervall Δt ausgetragene Masse Wasser [g]
$m_{F,i}$	Durch Frischluft im Zeitintervall Δt eingebrachte Masse Wasser [g]
M_L	Molare Masse trockener Luft 28,964 g/mol
$m_{p,i}$	Durch Pressluft im Zeitintervall Δt eingebrachte Masse Wasser [g]
$m_{S,i}$	Durch Sprühflüssigkeit in Δt = 5s eingebrachte Masse Wasser [g]
m_{Smax}	Granulierflüssigkeitsvolumen, bei welchem die Primärpartikeln mit Flüssigkeit gesättigt sind [ml]
m_{Smin}	Granulierflüssigkeitsvolumen, welches von Primärpartikeln absorbiert wird, ohne dass es zur Bildung von Flüssigkeitsbrücken kommt [ml]
m_{Sp}	Granulierflüssigkeitsvolumen aktuell [ml]
m_{Start}	Masse Wasser im Ausgangsprodukt [g]
$m_{TL,...}$	Masse trockener Luft in ... [kg]
m_{tr}	Masse wasserfreies Schüttgut [g]
M_W	Molare Masse des Wassers 18,016 g/mol
$m_{W,...}$	Masse Wasser in ... [g]
$m_{Wasser\ im\ Ansatz}(t)$	Masse Wasser im Ansatzbehälter zum Zeitpunkt t [g]
n	Stoffmenge [mol]
p	Atmosphärischer Druck [Pa]
p_i	Partialdruck der Komponente i [Pa]
p_i^0	Dampfdruck der reinen Komponente i [Pa]
$p_{Sealevel}$	Atmosphärischer Druck umgerechnet auf Meereshöhe [Pa]
p_{in}	Statischer Druck an der Messstelle Frischluftfeuchte [Pa]
p_{out}	Statischer Druck an der Messstelle Abluftfeuchte [Pa]
P	Leistung [W]
Δp	Druckverlust des strömenden Fluids [Pa]
p_D	Sättigungsdampfdruck des Wassers [Pa]

$\mathbf{p_{dyn}}$	Dynamischem Druck [Pa]
$\mathbf{p_L}$	Partialdruck trockener Luft [Pa]
$\mathbf{p_s}$	Sprühluftdruck [bar]
$\mathbf{p_{st}}$	Statischer Druck [Pa]
$\mathbf{p_w}$	Partialdruck des Wasserdampfes [Pa]
$\mathbf{p_w}$*	Gleichgewichtsdampfdruck über feuchtem Material [Pa]
Q	Wärmemenge [J]
$\dot{Q}$	Abgeführter Wärmestrom [W]
r	Abstand Messpunkt von Rohrmitte [m]
R	Universelle Gaskonstante 8,314 J · K^{-1} mol^{-1}
ΔR	Widerstandsänderung [Ω]
$\mathbf{R_{kalt}}$	Kaltwiderstand [Ω]
$\mathbf{R_L}$	Gaskonstante für Luft 0,287 J · g^{-1} · K^{-1}
$\mathbf{R_{Rohr}}$	Radius des Rohres [m]
$\mathbf{R_W}$	Gaskonstante für Wasser 0,461 J · g^{-1} · K^{-1}
$\mathbf{R_{warm}}$	Warmwiderstand [Ω]
$\mathbf{R_0}$	Widerstand bei 0 °C [Ω]
$\mathbf{R_T}$	Widerstand bei der Temperatur T [Ω]
$\dot{S}$	Sprührate [g/min]
$\dot{S}_{krit}$	Kritische Sprühgeschwindigkeit der Bindemittellösung [g/min]
t	Zeit [s]
ΔT	Temperaturänderung [K]
$\mathbf{t_{0,5}}$	Halbwertszeit [s]
$\mathbf{t_{0,9}}$	Zeit bis zum Erreichen von 90 % des Sollwerts [s]
$\mathbf{T_{in}}$	Frischlufttemperatur [K]
$\mathbf{T_{out}}$	Ablufttemperatur [K]
$\mathbf{T_p}$	Presslufttemperatur [K]
u	Strömungsgeschwindigkeit [m/s]
ū	Mittlere Strömungsgeschwindigkeit [m/s]
$\mathbf{u_{max}}$	Maximale Strömungsgeschwindigkeit [m/s]
$\mathbf{u_x}$	Strömungsgeschwindigkeit an der Position x [m/s]
$\mathbf{V_{...}}$	Volumenelement, welches im Zeitintervall Δt = 5 s bewegt wird [m^3]
$\dot{V}_{in}$	Volumenstrom feuchter Frischluft [m^3/h]
$\dot{V}_{out}$	Volumenstrom feuchter Abluft [m^3/h]
$\dot{V}_{add}$	Pressluftvolumenstrom [m^3/h]
$\mathbf{V_{Fl}}$	Flüssigkeitsvolumen [cm^3]
$\mathbf{V_H}$	Hohlraumvolumen des Schüttgutes [cm^3]
W	Elektrische Arbeit [Ws]
$\mathbf{w_f}$	Trocknungsverlust [% (m/m)]
$\mathbf{w_{tr}}$	Feuchtegehalt [% (m/m)]
$\mathbf{w_{lim}}$	Kritischer Feuchtegehalt des Schüttgutes [% (m/m)]
$\mathbf{W_{WB}}$	Massengehalt Wasser in der Bindemittellösung [%]
y	Wandabstand [m]
z	Zielgröße

Indizierungen

$_{...,in}$	… der Frischluft
$_{...,out}$	… der Abluft
$_{...,p}$	… der Pressluft
$_{...,w}$	… Wasser
$_{...,TL}$	… trockene Luft

Griechische Symbole

α	Materialspezifischer Temperaturbeiwert [1/K]
ρ	Dichte des Gases [kg/m³]
ρ_F	Dichte des Fluids unter Wirbelbedingungen [kg/m³]
ρ_{in}	Frischluftdichte [kg/m³]
ρ_K	Wahre Feststoffdichte [kg/m³]
ρ_{out}	Abluftdichte [kg/m³]
ρ_p	Pressluftdichte [kg/m³]
$\dot{v}_{tr}$	Trocknungsgeschwindigkeit
η	Dynamische Viskosität [Pa·s]
ν	Kinematische Viskosität [m²/s]
φ_{in}	Relative Frischluftfeuchte [%]
χ_f	Spezifische Luftfeuchtigkeit [g/kg]
χ_{in}	Feuchtigkeitsgehalt der Frischluft [g/kg]
φ_p	Relative Pressluftfeuchte [%]
χ_p	Feuchtigkeitsgehalt der Pressluft [g/kg]
φ_{out}	Relative Abluftfeuchte [%]
τ	Zeitkonstant [s]
τ_W	Wandschubspannung [N/m²]
χ_{out}	Feuchtigkeitsgehalt der Abluft [g/kg]
υ	Temperatur [°C]
υ_{Tau}	Taupunkttemperatur [°C]
∂	Symbol für partielle Differentiation
λ	Wärmeleitfähigkeit des Gases [W/mK]

Dimensionslose Kennzahlen

a	Überhitzungsverhältnis	$\frac{R_w}{R_k}-1$
a_w	Wasseraktivität	$\frac{p_w^*}{p_0}$
$\mathbf{c_w}$	Widerstandsbeiwert umströmter Körper	
ε_r	Relative Dielektrizitätskonstante [bei 20 °C]	$\frac{C_{Mat}}{C_0}$
ζ	Rohrreibungszahl	$\frac{2 \cdot d \cdot \Delta p}{\rho \cdot l \cdot u^2}$
k´	Korrekturfaktor	$\frac{wahrer\,Wert}{Messwert}$
κ	Von Kármán-Konstante	
PF	Profilfaktor	$\frac{u(x)}{\overline{u}}$
Pr	Prandtl-Zahl	$\frac{\eta \cdot c_p}{\lambda}$
$\Pi_{Sp,m}$	Granulierflüssigkeitsmenge	$\frac{m_{Sp}-m_{S\min}}{m_{S\max}-m_{S\min}}$
$\Pi_{Sp,t}$	Zugabezeit der Granulierflüssigkeitsmenge	$\frac{S \cdot t}{m}$
Re	Reynolds-Zahl	$\frac{u \cdot \rho \cdot L}{\eta}$
$\mathbf{R^2}$	Korrelationskoeffizient	$\frac{\sum_i (\hat{y}_i-\overline{y})^2}{\sum_i (y_i-\overline{y})^2}$
S	Flüssigkeitssättigungsgrad	$\frac{V_{Fl}}{V_H}$
$\mathbf{X_i}$	Molenbruch der Komponente i	$\frac{n_i}{n_{ges}}$

Je mehr die Waffen, mit denen wir fechten, mechanisiert werden, desto weniger mechanisch darf der Geist sein, der sie führt

J. F. C. Fuller
Anweisung für Führung und Einsatz 222/100 *„Die Panzerkompanie"*

1 EINLEITUNG

Der Begriff **Granulat** leitet sich vom lateinischen Wort „*granula*“ (= Körner) ab und umfasst körnige Haufwerke. Nicht nur in Instant-Sportgetränken oder in gewissen Diätetika, sondern auch als eigene Arzneiform finden Granulate weite Verbreitung auf dem Markt. Gewöhnlich werden diese Granulate in einer Flüssigkeit aufgelöst und danach getrunken. In der pharmazeutischen Praxis fungieren Granulate sehr häufig als Zwischenprodukte bei der Herstellung von Tabletten sowie von Kapselpräparaten.

Feste Arzneiformen bestehen im allgemeinen aus einem oder mehreren Wirk- und Hilfsstoffen. Werden moderne hochwirksame Wirkstoffe verarbeitet, so ist der Hilfsstoffanteil im Pulvergemisch deutlich größer als der Wirkstoffanteil. Mit geeigneten Verfahren können derartige Schüttgüter bis zur geforderten Homogenität gemischt werden. Ein direktes Verpressen zu Tabletten ist in den meisten Fällen jedoch nicht möglich, da diese Pulver folgende Nachteile aufweisen:

- Entmischungstendenz (z.B. im Füllschuh einer Tablettenpresse)
- Ungenügende Dosierungsgenauigkeit (Matrizenfüllung erfolgt volumetrisch)
- Schlechtes Fließverhalten
- Staubentwicklung infolge hohen Feinstaubanteiles
- Komprimierschwierigkeiten

Um diese Probleme zu umgehen, werden besagte Pulvermischungen durch geeignete Verfahren in Granulate definierter Korngröße überführt. Der Größenbereich erstreckt sich dabei üblicherweise auf das Intervall von 10 bis 2000 μm.

Der Überbegriff **Granulieren** umfasst sämtliche Herstellungsmethoden für körnige Endprodukte. Bei einer sogenannten **abbauenden Granulation** werden gröbere Stücke zu feineren Partikeln zerkleinert. Dies kommt in der pharmazeutischen Praxis fast ausschließlich dann zur Anwendung, wenn sogenannte „*Fehlchargen*“ einem Produktionsprozess wieder zugeführt werden sollen[1]. Im Gegensatz dazu ist das **Agglomerieren** als das Zusammenfügen disperser Stoffe zu größeren Stoffgebilden definiert und impliziert damit allgemein eine beliebige Kornvergrößerungsoperation[2]. Bei diesem auch als **aufbauende Granulation** bezeichneten Prozess werden kleine Einzelpartikeln („*Primärpartikeln*“) durch Bindungen zu größeren, in ihrer Form möglichst einheitlichen Granulaten zusammengefügt. Die folgende Abbildung gibt einen Überblick über die technische Realisierbarkeit:

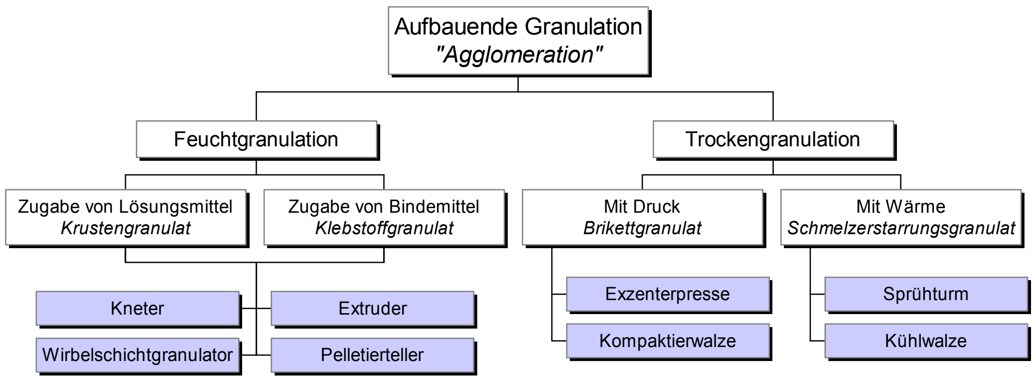


Abbildung 1-1 *Übersicht über aufbauende Granulationsverfahren*

Sämtliche Granulationsverfahren umfassen die Grundoperationen Mischen der Primärpartikeln, Aggregieren und Klassieren der Produkte. Wenn mindestens ein Bestandteil des zu granulierenden Schüttgutes in einem Lösungsmittel löslich ist, so können durch Zugabe dieser Flüssigkeit Pulverbestandteile angelöst werden. Nach späterem Entfernen des Lösungsmittels kommt es dann zur Ausbildung von Festkörperbrücken (Kristallkrusten) zwischen den Primärpartikeln. Derartige Krustengranulate weisen im allgemeinen keine sehr starken Bindungen zwischen den Partikeln auf. Werden zu den Primärpartikeln Klebstofflösungen (hauptsächlich Stärkekleister, Gelatine, Polyvinylpyrrolidon, Celluloseether oder andere Polymere) hinzugegeben, so wird durch die hohe Plastizität der Bindungen ein starker Zusammenhalt der Granulate erzielt.

Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist die Wirbelschichtgranulation (WSG), eine aufbauende Feuchtgranulation. Der Begriff **Wirbelschicht** wurde in den 20er Jahren des vorigen Jahrhunderts durch den deutschen Chemiker Fritz WINKLER implementiert[3]. Er entwickelte bei der BASF in Ludwigshafen den nach ihm benannten Winkler-Generator: Um aus Braunkohle Synthesegas gewinnen zu können, wurden Kohleteilchen durch ein Sauerstoff-Dampf-Gemisch in den Zustand einer „wirbelnden Schicht“ überführt. In den 40er Jahren begann man in den USA, das Cracken von schweren Öldämpfen in Reaktoren durchzuführen, in denen der Katalysator in Form feiner Partikeln von dem umzusetzenden Gas umströmt wurde und dabei ebenfalls eine Wirbelschicht ausbildete. Man machte sich dabei die Tatsache zu Nutze, dass durch eine bestimmte Erhöhung der Gasgeschwindigkeit die Katalysatorteilchen aus dem Reaktor herausgetragen und in einem anderen Behältnis aufgefangen werden konnten, um sie dort zu regenerieren. Seit den frühen 50er Jahren fand die Wirbelschichttechnik vielfältige Nutzung in der Verfahrenstechnik und dabei insbesondere in der chemischen Reaktionstechnik. Als Beispiele seien die Aufbereitung von Erzen, Mineralien sowie Gas/Gas-Reaktionen mit einem Feststoff als Katalysator oder Gas/Feststoff-Reaktion wie die Kohleverbrennung genannt.

Im Jahre 1958 wurde von D.E. WURSTER erstmals die pharmazeutische Anwendungsmöglichkeit von Wirbelschichtverfahren beschrieben[4]. Seit Mitte der 60er Jahre fand diese Technik Anwendung bei Trocknungsprozessen[5], später wurden Mischungs-[6], Granulations-[7] und Filmüberzugsverfahren[8] etabliert.

Absicht dieser Arbeit ist es, einen Beitrag zur besseren Beschreibung und zum tieferen Verständnis von Wirbelschichtgranulationen zu liefern, um damit die Voraussetzungen für die Steuerung sowie die Erstellung von Simulationen derartiger Prozesse zu schaffen.

2 STAND DER WISSENSCHAFT

2.1 GRUNDLAGEN DES WSG-VERFAHRENS

2.1.1 Das Wirbelschicht-Verfahrensprinzip

Das allgemeine Prinzip eines Wirbelschichtprozesses besteht darin, eine auf einem Siebboden (= **Anströmboden**) ruhende Masse von Feststoffpartikeln durch einen aufwärts gerichteten Gasstrom (= **Fluid**) in einen Schwebezustand zu überführen, um damit einen flüssigkeitsähnlichen Zustand zu realisieren*. Die Analogie zwischen Wirbelschicht und Flüssigkeit wird in folgenden Beobachtungen deutlich: Wird der Behälter, in welchem die Wirbelschicht erzeugt wird, geneigt, so stellt sich die Oberfläche der Schicht stets waagerecht ein. Wird in der Behälterwand unterhalb der Wirbelschichtoberfläche eine Öffnung geschaffen, so fließt der Feststoff wie ein Flüssigkeitsstrahl heraus. Werden in eine Wirbelschicht aus Partikeln gleicher Größe Körper geringerer Dichte gegeben, so schwimmen diese förmlich auf der Oberfläche. Aufgrund der beschriebenen Ähnlichkeiten zur Flüssigkeit wird die Ausbildung einer Wirbelschicht auch als **Fluidisation** bezeichnet.

2.1.2 Strömungsmechanische Grundlagen

Voraussetzung zum Erreichen der Fluidisierung ist, dass das Schüttgut durch den Durchströmungswiderstand „getragen“ wird. Wird der Druckverlust Δp in Abhängigkeit von der Fluidgeschwindigkeit u in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen, so führt dies zur Einteilung in drei prinzipielle Bereiche[9]:

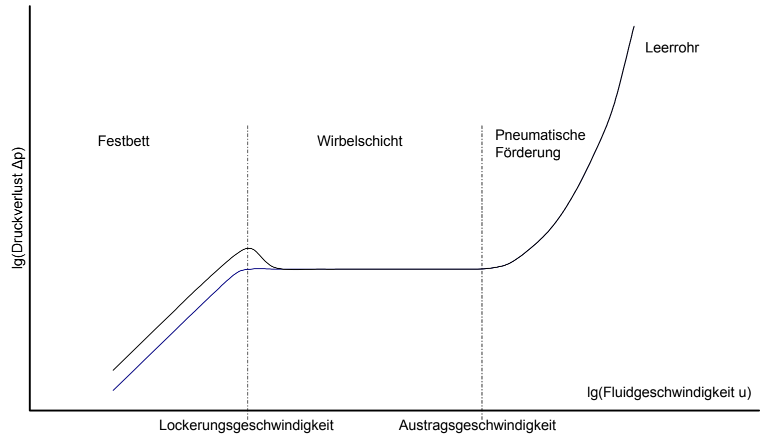


Abbildung 2-1 *Druckverlustverlauf einer homogen fluidisierenden Schicht*

---

* *Auch Flüssigkeiten können sowohl als Fluid als auch als Wirbelgut Verwendung finden. Es ist auch der Fall denkbar, dass aufgrund höherer Dichte des Fluids der Zustrom entgegen der Gravitation erfolgen muss*

Bereich I: **Festbett**

- Produkt liegt auf Anströmboden auf
- Partikeln sind gegenseitig fixiert
- Durchströmung der Schicht hat keine Partikelbewegung zur Folge
- Festbettporosität ε_0
- Kann durch Überfeuchtung eines Fließbetts entstehen

Bereich II: **Wirbelschicht** (Synonym „*Fließbett*")

- Durch von unten einströmendes Fluid wird das Schüttgut aufgelockert. Die Strömungsgeschwindigkeit, bei der diese Auflockerung gerade einsetzt, wird als **Lockerungsgeschwindigkeit** (oder auch „*Wirbelpunktsgeschwindigkeit*") bezeichnet; der entsprechende Zustand heißt „*Minimalfluidisierung*"
- Unter Berücksichtigung des Auftriebes muss das Gewicht des Schüttgutes pro Fläche Anströmboden dem Druckverlust Δp entsprechen[9]:

$$\Delta p = \frac{(\rho_K - \rho_F)\cdot V_w \cdot g}{A_{Ström}} \qquad (2.1)$$

Δp	*Druckverlust des strömenden Fluids [Pa]*
ρ_K	*Wahre Feststoffdichte [kg/m³]*
ρ_F	*Dichte des Fluids unter Wirbelbedingungen [kg/m³]*
g	*Erdbeschleunigung [9,81 m/s²]*
V_w	*Wahres Volumen des Schüttgutes [m³]*
$A_{Ström}$	*Fläche Anströmboden [m²]*

- Partikeln weisen gegenseitige Beweglichkeit auf
- Partikelabstand vergrößert sich; die Porosität nimmt zu und wird jetzt als Lockerungsporosität ε_L bezeichnet; die Wirbelschicht vergrößert sich
- Es entsteht eine Strömung im sich bewegenden Gut
- Kontinuumseigenschaften ähnlich einer schwach bewegten Flüssigkeit
- Intensive Vermischung erst beim 2 bis 6 fachen der Lockerungsgeschwindigkeit
- Die Stärke interpartikulärer Kräfte ist abhängig von der Feuchtigkeit des zur Fluidisierung verwendeten Gases[10]; van-der-Waals-Kräfte sind vernachlässigbar
- Reale Wirbelschichten zeigen auch in diesem Bereich einen mit der Strömungsgeschwindigkeit u leicht ansteigenden Druckverlust, weil die zunehmende Bewegung der Partikeln und die Wandreibung Energie verbrauchen

Bereich III: **Pneumatische Förderung**

- Die Fluidgeschwindigkeit übersteigt die Sinkgeschwindigkeit der einzelnen Partikeln („*Austragspunktgeschwindigkeit*")
- Wirbelschicht geht in den Zustand einer Flugstaubwolke über
- Partikeln werden aufgrund zu hoher Strömungsgeschwindigkeit des Fluids aus der Wirbelschicht herausgetragen
- Der Druckverlust im Wirbelschichtbehälter steigt entsprechend dem eines vollturbulent durchströmten Rohrleitungselements proportional zum Quadrat der Geschwindigkeit an
- Die Porosität erreicht Werte nahe bei 1

- Um der Gefahr einer pneumatischen Förderung entgegenzuwirken, sind alle gängigen WSG-Anlagen mit Rückhaltefiltern oberhalb des Granulationsgefäßes ausgestattet

Der ideale Zustand eines Wirbelbetts wird als **homogene Wirbelschicht** (Abb. 2-2 A) bezeichnet: Alle Partikeln werden gleichmäßig vom Fluid umströmt und im Wirbelbett verteilt. Dieser Zustand ist nur mit Partikeln ausschließlich gleicher Korngröße und Dichte in Verbindung mit Flüssigkeiten als Fluid zu realisieren[11]. Im Gegensatz dazu ist die Konzentration der Partikeln in der Wirbelschicht bei der Verwendung von Gasen als Fluid immer orts- und zeitabhängig. Die sogenannten **Inhomogenen Wirbelschichten** werden in verschiedene Arten unterteilt[3, 12]:

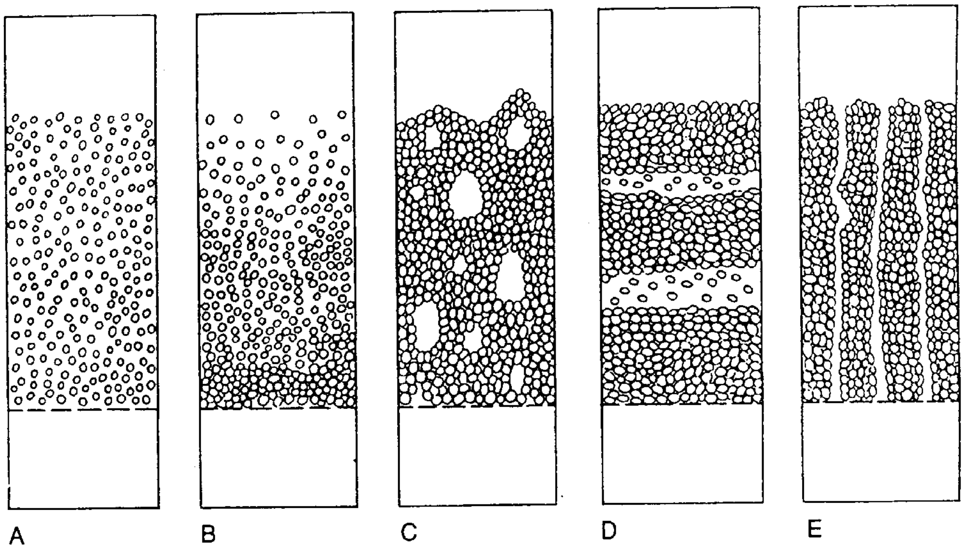


Abbildung 2-2 *Wirbelschichtzustände*

<u>Klassierende Wirbelschicht (Abb. 2-2 B):</u>
Wird ein Schüttgut unterschiedlicher Korngröße aber konstanter spezifischer Dichte fluidisiert, so ordnen sich die kleinen Partikeln vornehmlich im oberen, die größeren im unteren Bereich der Schicht an. Die Teilchenkonzentration ist vom Ort, nicht aber von der Zeit abhängig.

<u>Sortierende Wirbelschicht (ohne Abbildung):</u>
Ein Schüttgut bestehend aus Partikeln gleicher Größe aber unterschiedlicher Dichte wird unter Fluidisierungsbedingungen aufgeteilt: Partikeln hoher spezifischer Dichte halten sich vorzugsweise im unteren, solche mit niedriger Dichte hingegen im oberen Bereich der Wirbelschicht auf. Die Teilchenkonzentration ist vom Ort, nicht aber von der Zeit abhängig.

<u>Brodelnde Wirbelschicht (Abb. 2-2 C):</u>
Die in der technischen Praxis am häufigsten beobachtete Form ist durch das Aufsteigen von partikelfreien Gasblasen gekennzeichnet. Da die Oberfläche der Wirbelschicht heftig bewegt wird, kommt es zu guter Durchmischung des Schüttgutes. Die Teilchenkonzentration ist zeit- und ortsabhängig.

<u>Stoßende Wirbelschicht (Abb. 2-2 D):</u>
Insbesondere bei WSG-Anlagen mit geringem Durchmesser des Ansatzbehälters können aufsteigende Gasblasen den gesamten Querschnitt des Behälters

erfüllen. Die Wirbelschicht wird dabei in mehrere Feststoffkolben zerteilt, die nach oben aufsteigen, bis sie schließlich zerplatzen. Infolgedessen bildet sich durch den permantenten Zerfall der Wirbelschicht ein periodischer Zustand aus. Die Teilchenkonzentration ist sowohl zeit- als auch ortsabhängig. Den Vorteilen einer besseren Durchmischung der Phasen sowie einem erleichterten Wärmetransport durch die Blasenbildung stehen die Nachteile eines verstärkten Partikelabriebs und eines erhöhten Verschleißes an produktberührenden Wänden gegenüber.

Kanaldurchbrochene Schüttschicht (Abb. 2-2 E):
Insbesondere bei kleinen, durch Feuchtigkeit oder elektrostatische Aufladung köhäsiven Partikeln ist eine Fluidisierung häufig nur schwierig zu realisieren. Das Fluid passiert vielmehr das ortsfeste Schüttgut in Strömungskanälen; eine Auflockerung des Festbetts unterbleibt („*missglückte Wirbelschicht*“). Die Teilchenkonzentration ist allein ortsabhängig.

Sprudelschicht (Abb. 2-7):
Durch konusförmige Ausführung des Materialbehälters kann eine Sonderform eines Wirbelbetts realisiert werden: Der Fluidstrom steigt in der Mitte des Gefäßes senkrecht auf und dehnt sich aus. Die Fluidgeschwindigkeit nimmt dabei nach oben sowie nach außen hin ab. Die Teilchen werden in der Mitte durch das Fluid nach oben gerissen, bewegen sich nach außen und gelangen über den Rand des Behälters wieder nach unten zum Anströmboden, um erneut herausgeschleudert zu werden. Aus der trichterförmig gestalteten Ansatzbehälterform resultiert damit eine fontänenartige Partikelbewegung. Diese Gestaltung der Behälterform ist insbesondere bei zur Kanalbildung neigenden Schüttgütern ein probates Mittel zur sicheren Fluidisierung.

2.1.3 Wirbelschicht-Granulations-Prozesse (WSG)

Wurden Wirbelschichtprozesse anfänglich nur für die Trocknung von Schüttgütern verwendet, so finden sie seit den 60er Jahren des vergangenen Jahrhunderts auch für Granulationsverfahren im Bereich der pharmazeutischen Technologie Anwendung[13]. Zur Durchführung einer Feuchtgranulation sind allgemein drei Grundoperationen nacheinander durchzuführen: Mischen, Granulieren und Trocknen. WSG-Prozesse bieten gegenüber allen anderen Herstellungsverfahren den Vorteil, alle genannten Schritte in der selben Maschine durchführen zu können. Ein weiterer Vorzug besteht darin, dass die GMP-Richtlinien bei derartigen Anlagen einfacher als bei anderen Verfahren zu realisieren sind[14]. Da die Fluidisierung fast ausnahmslos durch Saugventilatoren realisiert wird und daher in den Anlagen Unterdruck herrscht, sind die Gefahren des Austritts toxischer Materialien sowie Cross-contamination sehr stark verringert. Die enorme Reduktion des Arbeitsaufwandes und damit der Produktionskosten führte als Konsequenz zu einer weiten Verbreitung dieser Arbeitstechnik in der pharmazeutischen Industrie[15]. Für die batchweise Produktion pharmazeutischer Güter stehen heutzutage WSG-Anlagen mit Kapazitäten zwischen 1 und 800 kg zur Verfügung.

2.2 MISCHEN

Nachdem das zu granulierende Schüttgut (auch **Vorlage** genannt) in den Wirbelschichtgranulator überführt worden ist, wird in der ersten Phase des

WSG-Prozesses eine Mischung der Bestandteile durch intensive Verwirbelung ohne Zufuhr von Sprühflüssigkeit durchgeführt. Die Partikelbewegung ist nur bei Strömungsgeschwindigkeiten oberhalb der Lockerungsgeschwindigkeit möglich. Die Bewegung der Partikeln resultiert dabei insbesondere durch das Aufsteigen von Gasblasen im Wirbelbett[6]. Je größer der Durchmesser dieser Blasen ist, desto besser die Mischgüte. Die in WSG-Anlagen erreichbare Mischgüte wird allgemein als sehr gut eingeschätzt[16] und liegt deutlich über den Resultaten von Turbula- oder Kubusmischern[6]. Diese den WSG-Prozess einleitende Mischphase dauert gewöhnlich zwischen 10 und 30 Minuten. Da das Mischen durch einen warmen Luftstrom erfolgt, wird gleichzeitig eine Trocknung erreicht. Feststoffpartikeln, die eventuell durch anhaftende Feuchtigkeit kohäsiv geworden sind, lassen sich somit besser mischen. Zusätzlich führt diese Trocknung zu einer Konditionierung der Vorlage.

Während dieser Mischphase kann es zu einer elektrostatischen Aufladung des Pulvers und als Folge davon zu Entmischungserscheinungen kommen[17]. Messungen der statischen Elektrizität während eines Granulationsprozesses durch THURN brachten folgende Resultate[16]:

- Der Wert nimmt von der Mitte des Wirbelbettes aus nach außen hin konzentrisch ab
- Die elektrostatische Aufladung des Schüttgutes nimmt mit abnehmender Luftfeuchtigkeit des Fluids zu, erreicht zu Ende der Mischphase einen Maximalwert, um nach dem Sprühbeginn abzusinken und schließlich während der Trocknungsphase wieder anzusteigen
- Hohe Anteile hydrophoben Schüttguts fördern durch die elektrostatische Aufladung Entmischungstendenzen

2.3 GRANULIEREN

Die Zugabe einer Bindemittellösung (Klebstoffgranulation) oder eines reinen Lösungsmittels (Krustengranulation) zu dem Wirbelbett initialisiert die Aufbaugranulation. Die Flüssigkeitseinbringung ist mit Risiken für den Prozessverlauf behaftet: Eine zu hohe Flüssigkeitszufuhr kann ein Verklumpen des Wirbelgutes bzw. ein Ansetzen an Apparateteilen bewirken. Im Extremfall ist sogar ein Durchlaufen von Flüssigkeit durch den Anströmboden möglich.

2.3.1 Kritische Sprührate

Der Verlauf eines WSG-Prozesses wird in entscheidender Weise durch die Zugabekinetik der Bindemittellösung bestimmt. In Abhängigkeit von Temperatur, Feuchtegehalt und Volumenstrom der Zuluft wird bei zu geringer Sprührate die gesamte zudosierte Wassermasse unmittelbar verdampft und aus der Anlage gefördert, ohne den Wassergehalt des Granuliergutes zu erhöhen. Eine Agglomeration ist dabei nicht möglich. Wird die Sprührate hingegen zu hoch gewählt, kann eine zu starke Überfeuchtung des Granuliergutes zur Festbettbildung führen. Für die Regelung eines solchen WSG-Prozesses ist daher die Kenntnis derjenigen Sprühgeschwindigkeit, die den

Wassergehalt in der Anlage gerade nicht ändert, essentiell. Erste Ansätze zur Berechnung einer maximal erlaubten Sprühgeschwindigkeit zur Aufrechterhaltung eines Fließgleichgewichts erfolgten 1964 durch SCOTT et al[56]. Es wurde aufgezeigt, dass die zulässige Sprührate der Differenz der Feuchtegehalte von Zu- und Abluft sowie dem Volumenstrom direkt proportional ist. ORMÓS et al. definierten eine Gleichgewichtssprühgeschwindigkeit, bei der der Wärmeverlust der Zuluft dem Wärmebedarf für die Verdampfung der eingesprühten Flüssigkeit entspricht[18]. Als ***kritische Sprührate*** ist diejenige Sprühgeschwindigkeit definiert, bei welcher die mit der Bindemittellösung eingebrachte Masse an Wasser unter den herrschenden Zuluftfeuchtebedingungen und unter Annahme eines adiabatischen Prozesses gerade noch mit der Abluft ausgetragen werden kann[19]:

$$\dot{S}_{krit} = \frac{m(Bindemittellösung)}{\Delta t} \qquad \text{für Fließgleichgewicht Wasser} \qquad (2.2)$$

$\dot{S}_{krit}$ *Kritische Sprührate der Bindemittellösung [g/min]*

Zu Beginn dieser Arbeit fanden sich in der Literatur nur Berechnungsverfahren von S_{krit}, die die Kenntnis der aus dem Sprühvorgang resultierenden Ablufttemperatur voraussetzten. Eine Berechnung allein basierend auf den Zustandsgrößen der Zuluft war hingegen nicht möglich.

2.3.2 Bindungsmechanismen in Granulaten

Die Bindungsmechanismen, die einer Agglomeration zugrunde liegen, wurden erstmals 1958 durch RUMPF beschrieben[20]. Die für den Zusammenhalt der Primärpartikeln innerhalb eines Agglomerates relevanten Kräfte werden demzufolge nach dem Zeitpunkt ihres Wirksamwerdens in zwei Gruppen eingeteilt:

2.3.2.1 Temporär wirksame Kräfte – Flüssigkeitsbindungen

Bei der Feuchtagglomeration überträgt die Agglomerationsflüssigkeit Bindungskräfte zwischen den Primärpartikeln. Diese Flüssigkeitsbindungen haben ausschließlich während der Dauer der Granulation bestand. Die Zugabe einer geeigneten Menge Agglomerationsflüssigkeit führt zu einer Verdichtung des Granulates. Dieser Zustand wird später durch Feststoffbrücken fixiert.

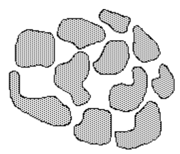
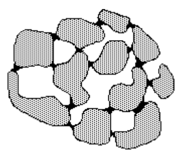
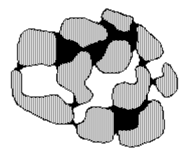
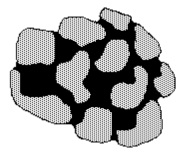
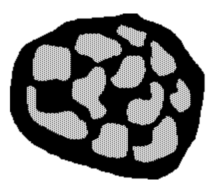
Wird einem porösen Schüttgut Flüssigkeit zugefügt, so füllt diese zu einem gewissen Teil dessen Hohlraumvolumen aus. Der Quotient aus Flüssigkeitsvolumen V_{FL} zu Hohlraumvolumen V_H wird als Flüssigkeitssättigungsgrad S bezeichnet:

$$S = \frac{V_{Fl}}{V_H} \qquad (2.3)$$

S	*Flüssigkeitssättigungsgrad [-]*
V_{Fl}	*Flüssigkeitsvolumen [cm³]*
V_H	*Hohlraumvolumen des Schüttgutes [cm³]*

SCHUBERT[21] hat 1973 die Zugfestigkeit eines feuchten Schüttgutes in Abhängigkeit des Flüssigkeitssättigungsgrades untersucht. Die Festigkeit nimmt demzufolge mit steigendem S zu. Dabei können folgende Bereiche unterschieden werden:

Tabelle 2-1 *Flüssigkeitssättigungsgrade*

Haftflüssigkeitsbereich • *S < 0,01* • *Anlagerung weniger Flüssigkeitsmoleküle auf der Partikeloberfläche* • *Keine freie Beweglichkeit der Flüssigkeit* • *Adsorptionsschichten können molekulare Anziehungskräfte von Korn zu Korn übertragen, sofern sich diese berühren (nur an Rauhigkeitsspitzen)*	
Zwickel- und Brückenbereich („pendular state“) • *0,01 < S < 0,3* • *Bildung von Flüssigkeitsbrücken, beginnend an den Berührpunkten der Partikeln* • *Flüssigkeitsmoleküle frei beweglich* • *Einzelne, isolierte Flüssigkeitsbrücken*	
Übergangsbereich („funicular state“) • *0,3 < S < 0,8* • *sowohl Flüssigkeitsbrücken als auch mit Flüssigkeit aufgefüllte Porenräume*	
Kapillarbereich („capillary state“) • *0,8 < S ≤ 1* • *sämtliche Kapillaren des Schüttgutes mit Flüssigkeit gesättigt* • *wird das Agglomerat nicht vollkommen von der Flüssigkeit umschlossen, bilden sich am Rand der Poren konkave Oberflächen und der entstehende kapillare Unterdruck bestimmt die Festigkeit des Agglomerats* • *Agglomerat wird nur durch die Oberflächenspannung der Granulierflüssigkeit an der Oberfläche des Granulatpartikels zusammengehalten* • *Die Kräfte im Inneren des Agglomerats heben sich auf* • *Beim Erreichen des Flüssigkeitssättigungsgrades 1 ist die Beherrschung eines WSG-Vorganges meist nicht mehr möglich*	
Mit Feststoffpartikeln gefüllter Tropfen („droplet/suspension“) • *S > 1* • *Die Flüssigkeit umhüllt den Feststoff vollständig* • *An Stelle der konkaven Oberfläche in den Poren tritt eine konvexe Oberfläche des Flüssigkeitstropfens* • *Sämtliche kapillaren Haftkräfte zwischen den Partikeln verschwinden* • *Das Agglomerat wird durch die Oberflächenspannung des Tropfens zusammengehalten*	

Voraussetzung für reproduzierbare Feuchtgranulierungen ist daher die Durchführung der Agglomerationsprozesse bei definierten Feuchtegehalten des Agglomerationsguts.

2.3.2.2 Permanent wirksame Kräfte – Feststoffbrücken

Die hier zu behandelnden Kräfte determinieren die Festigkeit des getrockneten Granulats. Ihre Reichweite ist im allgemeinen kurz. Es wird hier nur auf die bei WSG-Prozessen relevanten Bindungsmechanismen eingegangen.

Erhärtende Bindemittel

Bei Klebstoffgranulaten kommt es schon während der Granulation, spätestens aber in der Trocknungsphase durch die Entfernung der Agglomerationsflüssigkeit zu einer Konzentrierung der Bindemittellösung. Die Lösung wird zähflüssiger und letztendlich erhärten die gelösten Polymeren. Hierdurch werden aus frei beweglichen Flüssigkeitsbrücken zunehmend feste Bindemittelbrücken mit vergleichsweise hoher Bindungskraft. Der Zusammenhalt des Agglomerats basiert jetzt auf Adhäsions- und Kohäsionskräften. Diese Klebstoffverbindungen weisen die höchsten Festigkeiten auf; sie liegen etwa in der Größenordnung von Sinterbrücken[20].

Kristallisation gelöster Stoffe

Sofern die Mischung der Primärpartikeln leicht lösliche Komponenten enthalten, kann durch Zugabe eines geeigneten Lösungsmittels eine Krustengranulation durchgeführt werden. In der Trocknungsphase konzentriert sich der gelöste Stoff im Zwickelwasser auf und bildet abschließend Kristallbrücken. Ist die Löslichkeit des Stoffes hingegen gering, so erfolgt die Auskristallisation indessen im zwischenpartikulären Bereich ohne Ausbildung von Feststoffbrücken. Die Festigkeit dieser Kristallbrücken ist oft nicht so hoch wie die von Bindemittelbrücken in Klebstoffgranulaten[52]. APPELGREN führt die gegenüber Tablettiermassen mit anderen Herstellungsverfahren deutlich besseren Tablettiereigenschaften von WSG-Granulaten auf deren geringen Anteil von Kristallbrücken zurück[22]

Elektrostatische Anziehung

Derartige anziehende Kräfte treten nur bei Teilchen unterschiedlicher Ladung auf. Die wirksame Kraft wird durch das Coulombsche Gesetz beschrieben. Ein negativer Effekt besteht in der Pulveranlagerung an Behälterwänden, welche zum Teil auch während des Sprühvorganges nicht abgelöst werden können[52]. Die Festigkeit elektrostatischer Bindungen liegt weit unterhalb der von van-der-Waals oder Kapillarkräften[20].

Van-der-Waals-Kräfte

Diese auch als „*Haftkraft*" bezeichnete Anziehung macht sich bei kleinen Partikeln deutlich bemerkbar und ist unter anderem für kohäsives Verhalten von Schüttgütern mit einhergehenden Fließproblemen verantwortlich. So kann es z.B. während des Mischvorganges mikronisierter Pulver zu Bildung von Agglomeraten kommen, deren Festigkeit jedoch sehr gering ist. Sofern die Teilchenabstände ausreichend klein sind, werden van-der-Waals-Kräfte für Partiklen unter 10 µm wirksam[20]. Nach GILBERTSON scheinen für die gewöhnlich bei WSG-Prozessen verwendeten Schüttgüter Van-der-Waals-Kräfte keine nennenswerte Rolle zu spielen[23].

Formschlüssige Bindungen

Ihr Vorkommen ist auf faserförmige, plättchenförmige sowie sperrige Partikeln beschränkt. Bei geeigneter Bewegung und Pressung verhaken, verästeln oder verfilzen sich die Teilchen ineinander

2.3.3 Phasen der Granulation nach Schæfer und Wørts

LINKSON hatte 1973 den Granulationsverlauf in einer Granuliertrommel untersucht und dabei festgestellt, dass das Wachstum der Granulen von der Partikelgrößenverteilung des Ausgangsmaterials sowie vom Feuchtigkeitsgehalt während der Prozesses beeinflusst wird[24]. Fünf Jahre später publizierten die beiden dänischen Wissenschaftler SCHÆFER und WØRTS allgemeine Hinweise über die Steuerung von WSG-Verfahren[25], die bis heute ihre grundlegende Bedeutung beibehalten haben. Der Wachstumsmechanismus für Granulen bei der WSG kann demzufolge in drei Phasen unterteilt werden:

Phase 1: Keimbildung („**nucleation**")
Mit dem Beginn des Aufsprühens von Bindemittellösung kommt es zur Ausbildung von Flüssigkeitsbrücken zwischen zwei oder mehreren Primärpartikeln; es entstehen sogenannte Keime (nuclei). Da die Zugfestigkeit der Flüssigkeitsbrücken umgekehrt proportional zum Durchmesser der Partikeln ist, bilden sich aus den kleinen Primärpartikeln leicht nuclei; die Wahrscheinlichkeit des Zusammenlagerns von zwei entstandenen Keimen ist hingegen gering. Mit steigender Wassermasse auf der Oberfläche der Partikeln nimmt die Anzahl der Flüssigkeitsbrücken und damit die Wachstumsrate der Agglomerate zu.
Es gilt allgemein:

- Je größer die Wassermasse in der Wirbelschicht, desto schneller das Granulatwachstum
- Je größer die Tropfen der Sprühflüssigkeit, desto größer sind die daraus resultierenden Agglomerate
- Je stärker die Haftkraft des Bindemittels, desto stabiler sind die entstehenden Granulate
- Je höher die Konzentration an Bindemittel, desto fester sind die resultierenden Granulate

Phase 2: Übergang („**transition**")
Nachdem der überwiegende Teil der Primärpartikeln zu Agglomeraten zusammengelagert ist, geht bei weiterem Einsprühen von Bindemittellösung die Wachstumsrate zunächst zurück. Die anfangs durch Flüssigkeitsbrücken zusammengehaltenen Agglomerate konsolidieren sich durch Aufnahme weiterer Bindemittellösung. Aus Phase 1 verbliebene sowie durch mechanischen Abrieb anfallende Primärpartikeln können an bestehende Agglomerate angelagert werden. Im Fall relativ hoher Sprühraten ist es oft nicht möglich, Phase 2 von Phase 1 abzugrenzen.

Phase 3: Sekundäragglomeration („**ball growth**")
Bei hoher Klebkraft des Bindemittels und weiterer Zuführung von Bindemittellösung kann es zu Koaleszenz der nuclei kommen. Es entstehen unregelmäßig geformte, bis zu mehreren Zentimetern große Granulen. Wird ein kritischer Wassergehalt überschritten, so kommt es zu einer Festbettbildung. Um dies zu verhindern, muss der Gasvolumenstrom erhöht werden. Da der WSG-Prozess in dieser Phase nur schwer beherrschbar ist, wird besagter Zeitabschnitt auch als *„unkontrolliertes Kornwachstum"* bezeichnet.

Da Sekundäragglomeration im allgemeinen ungewünscht ist, gilt es, die Bindemittelzufuhr während der Übergangsphase zu beenden und den so erhaltenen Agglomerationsstatus durch Trocknung zu fixieren. Von BECHER sind

intensive Untersuchungen über die Abhängigkeit der Agglomeratbildung von der Position in der Wirbelschicht durchgeführt worden[26]. So wird aufgezeigt, dass innerhalb des Sprühkegels ein Partikelwachstum viel wahrscheinlicher ist als in Bereichen oberhalb der Sprühdüse.

2.3.4 Bedeutung der Gutfeuchte

Da die Tendenz der Granulatteilchen, miteinander zu verkleben, mit steigendem Wassergehalt des Schüttgutes zunimmt, ist diese Größe essentiell für die Prozesssteuerung, um ein definiertes Ergebnis zu erzielen. Nicht nur das Verhältnis von Flüssigkeit zu Feststoff, sondern auch die optimale Verteilung beider Komponenten ist entscheidend für das Granulationsergebnis[27]. ORMÓS führte 1973 den Begriff des **kritischen Feuchtegehalts** w_{lim} ein, bei welchem die Haftkräfte auch durch eine Erhöhung des Zuluftvolumenstromes nicht mehr überwunden werden können.[28,29] Eine Überschreitung von w_{lim} führt zur Festbettbildung; die Wirbelschicht ist damit irreversibel zusammengebrochen. Es kommt daher darauf an, diese Festbettbildung durch geeignete Steuerung des Prozesses zu verhindern. Die Entwicklung des Wassergehalts eines Schüttgutes während der Granulationsphase kann einem der beiden prinzipiellen Kurvenverläufe zugeordnet werden[46]:

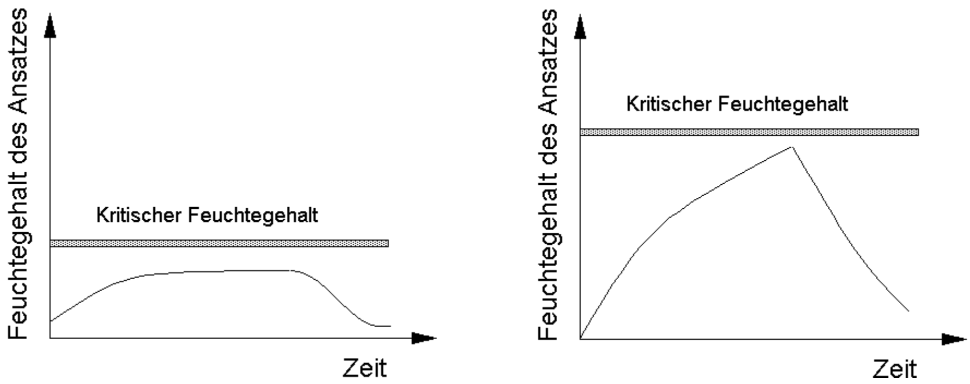


Abbildung 2-3 *Feuchtegehalt des Schüttgutes während der Granulationsphase. Links Krustengranulation, rechts Klebstoffgranulation*

Bei einer Krustengranulation muss nach kurzer Zeit im zu granulierenden Gut ein für die gesamte Granulationsphase konstanter Feuchtegehalt erzielt werden. Bei einer Klebstoffgranulation dagegen steigt der Feuchtegehalt während des Zusprühens der Bindemittellösung stetig an. Bei beiden Granulationsprinzipien kommt es darauf an, den kritischen Feuchtegehalt nicht zu erreichen, um unkontrolliertes Kornwachstum zu vermeiden.

2.4 TROCKNEN

Bei der Trocknung eines Granulates werden folgende drei Ziele verfolgt:

1. Die Trocknung soll rasch erfolgen (geringer Aufwand, geringe Beanspruchung der Granulen)

2. Um eine reproduzierbare Weiterverarbeitung zu ermöglichen, soll das Granulat eine definierte Restfeuchte (aus Gründen der Tablettierbarkeit meist zwischen 1 und 5 % (m/m)) aufweisen
3. Die Temperatur des Gutes darf bei thermolabilen Stoffen einen kritischen Wert nicht übersteigen

Unmittelbar nach der Beendigung des Aufsprühens von Bindemittellösung setzt die Endtrocknung des Granulates ein. Infolge mechanischer Beanspruchung der zuvor gebildeten Agglomerate durch die Bewegung im Wirbelbett kann es im Verlauf dieser Phase zu Abrieb, in Extremfällen sogar zum Zerfall der Partikeln kommen. Es sind noch weitere Veränderungen eines Schüttgutes im Verlauf einer Trocknung möglich:

- Schrumpfung
- Formveränderung durch Abrieb bzw. Zerfall
- Bildung von Krusten an der Oberfläche, Verstopfung von Poren
- Ausbildung von Konzentrationsgradienten löslicher Stoffe

Die Trocknung ist folglich ein kritischer Prozessschritt, der exakt gesteuert werden muss. Voraussetzung hierfür ist das genaue Verständnis des Ablaufes einer solchen Operation. Eine exakte rechnerische Simulation eines Trocknungsverlaufes wurde bisher als unmöglich angesehen[30]

2.4.1 Grundlagen und Definitionen

Eine Trocknung hat das Ziel, eine Flüssigkeit von einem Feststoff oder auch einer anderen Flüssigkeit abzutrennen. Sie ist eine wichtige pharmazeutisch-technologische Grundoperation.

Feuchte Schüttguter können Wasser auf unterschiedliche Art gebunden haben[31]:

Tabelle 2-2 Bindung von Wasser in Schüttgütern

	Erläuterung	Beispiel	Bindungswärme [kJ/mol]
HAFTWASSER	• An der Oberfläche sowie in größeren Hohlräumen im Inneren von Feststoffen • Frei beweglich	Nasse Festkörperoberflächen	0
KAPILLARWASSER	• Physikalisch gebunden • Freie Beweglichkeit	Glasfritten, Molekularsiebe	0..5
HYDRATATIONSWASSER	• Quellungswasser • Nicht stöchiometrisch gebunden	Gele z.B. Gelatine	0..20
ADSORBIERTES WASSER	• Physikalisch gebunden • Auch Wasserstoffbrückenbildung • Vollständige Entfernung erfordert intensives Trocknen	Alle hydrophilen Festkörperoberflächen an feuchter Luft	2..60

	Erläuterung	Beispiel	Bin-dungs-wärme [kJ/mol]
KRISTALLWASSER	• Kristallhydrate • Chemisch gebunden • Entfernung des Wassers erst bei hohen Temperaturen unter Zerstörung der Kristallstruktur	$CaCl_2 \cdot 6\ H_20$	5..40
KONSTITUTIONS-WASSER	• Chemisch gebunden	$Ca(OH)_2$	20..100

Unter dem Begriff **Bindungswärme** versteht man dabei den Energiebetrag, der zur Aufhebung der Bindung des Wassers an den Feststoff erforderlich ist. Je höher die Bindungswärme ist, desto schwieriger ist das Wasser vom betreffenden Schüttgut zu entfernen.

Zur Beschreibung des massenbezogenen Anteils gebundener Feuchtigkeit eines Schüttguts existieren die im folgenden aufgeführten Definitionen: Das EuAB bezeichnet den auf die Masse des feuchten Guts bezogenen Masseverlust in Prozent (m/m) als **Trocknungsverlust w_f**

$$w_f = \frac{m_f - m_{tr}}{m_f} \cdot 100 \tag{2.4}$$

m_w Masse an Wasser [g]
m_f Masse feuchtes Gut [g]
m_{tr} *Masse wasserfreies Gut [g]*

Ausgehend von der Summe

$$m_f = m_{tr} + m_w \tag{2.5}$$

folgt damit:

$$w_f = \frac{m_w}{m_f} \cdot 100 \tag{2.6}$$

Für genauere Untersuchungen - insbesondere die Bestimmung von Trocknungsraten - ist die Angabe des **Feuchtegehaltes w_{tr}** (synonym: „*Wassergehalt*“) bezogen auf die Masse an Trockensubstanz zu bevorzugen[32].

$$w_{tr} = \frac{m_w}{m_{tr}} \cdot 100 \tag{2.7}$$

Es bestehen die folgenden Beziehungen zwischen Trocknungsverlust und Feuchtegehalt:

$$w_{tr} = \frac{100 \cdot w_f}{100 - w_f} \quad (2.8)$$

$$w_f = \frac{100 \cdot w_{tr}}{100 + w_{tr}} \quad (2.9)$$

Die folgende Abbildung zeigt den Zusammenhang zwischen w_{tr} und w_f. Sie verdeutlicht, dass bei Feuchtegehalten über 10 % eine deutliche Abweichung zwischen beiden Größen vorliegt.

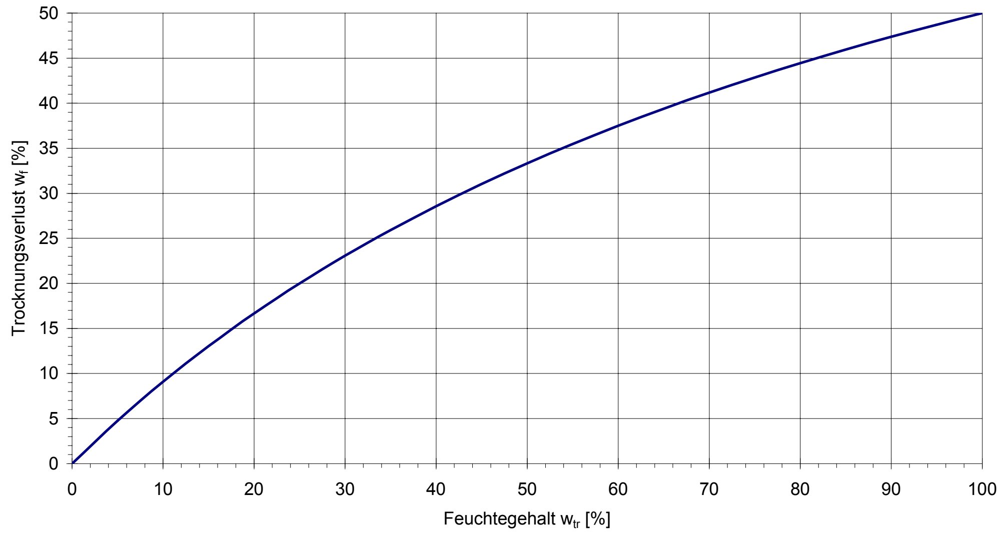


Abbildung 2-4 *Zusammenhang von Feuchtegehalt und Trocknungsverlust*

Als weitere Maßzahl für die in einem Schüttgut gebundene Feuchtigkeit ist der Begriff der „**Wasseraktivität**" a_w eingeführt worden. Sie ist definiert als das Verhältnis von relativem Wasserdampfdruck über dem Gut zu dem Sättigungsdampfdruck unter gleichen Temperatur- und Druckbedingungen[33].

$$a_w \approx \frac{p_w^*}{p_0} \quad (2.10)$$

a_w *Wasseraktivität [dimensionslos, Wertebereich 0..1]*
p_w^* *Gleichgewichtsdampfdruck über dem feuchten Material [Pa]*
p_D *Sättigungsdampfdruck des Wassers bei gleicher Temperatur und Druck [Pa]*

Die Wasseraktivität kann auch aufgefasst werden als diejenige relative Luftfeuchtigkeit, die sich einstellt, wenn das Gut im Gleichgewicht mit der Luft steht*. Dem Wasserdampfdruck über reinem Wasser entspricht eine Wasseraktivität von a_w = 1,0. Weist ein Material die Wasseraktivität von 1,0 auf, so lässt sich sein Zustand nicht mehr allein durch den a_w-Wert charakterisieren, da beliebige Mengen freien Haftwassers enthalten sein können. In einem sol-

* *Die Wasseraktivität wird daher auch als „relative Gleichgewichtsfeuchte" bezeichnet*

chen Fall muss zusätzlich der Wassergehalt angegeben werden. Der a_w-Wert ist sehr stark temperaturabhängig, denn bei steigender Temperatur nimmt auch der Wasserdampfpartialdruck zu. Eine exakte Bestimmung des a_w-Wertes einer Probe ist erst dann möglich, wenn diese mit der Umgebung thermisch äquilibriert ist[34]. Zwei Schüttgüter mit gleichem Wassergehalt können unterschiedliche Wasseraktivitäten aufweisen, da letztere unter anderem durch die Korngröße und die Porengestaltung des Materials beeinflusst wird[35]. Viele technologische Phänomene lassen sich mit der Wasseraktivität besser als mit dem Wassergehalt deuten.

2.4.2 Trocknungsverfahren

Eine Trocknung kann grundsätzlich auf zwei verschiedene Arten realisiert werden:

Tabelle 2-3 *Übersicht über die Trocknungsverfahren*

Mechanisch	Entfernung der Flüssigkeit durch Schleudern oder Pressen
Thermisch	Die Flüssigkeit wird zunächst in den gasförmigen Zustand überführt, um dann in einem zweiten Schritt als Gas durch Diffusion oder Strömung entfernt zu werden. Dabei werden folgende Übergänge unterschieden:
	Verdunstung: Übergang der Flüssigkeit in die Dampfphase bei einer Temperatur unterhalb des Siedepunkts (d.h. der Dampfdruck der feuchten Oberfläche ist kleiner als der Atmosphärendruck)
	Verdampfung: Übergang der Flüssigkeit in die Dampfphase bei Siedetemperatur (d.h. der Dampfdruck der feuchten Oberfläche entspricht dem Atmosphärendruck)
	Sublimation: Übergang direkt vom festen Aggregatzustand in die Gasphase (findet bei der Gefriertrocknung Anwendung)

Nach der Art der Energieübertragung können folgende Trocknungsverfahren unterschieden werden:

1. **Kontakttrocknung**: das zu trocknende Gut hat direkte Berührungsflächen mit dem Heizelement; die Verdunstung bzw. Verdampfung erfolgt an der Unterseite des Gutbetts, welches vom aufsteigenden Dampf durchzogen wird.

2. **Strahlungstrocknung**: Infrarot-Strahlung induziert innermolekulare Schwingungen der bestrahlten Materie. Hieraus resultiert, dass die Absorption von IR-Strahlung sehr stark von der stofflichen Zusammensetzung des Gutes abhängt. Die Verdunstung bzw. Verdampfung erfolgt selektiv an der Oberfläche des Guts; Flüssigkeit diffundiert aus tieferen Gutschichten nach. Die Wärmebelastung ist im Vergleich zur Kontakttrocknung geringer. Ein Nachteil dieser Trocknungsart besteht in der Aufheizung der verwendeten Strahlungsquellen auf bis zu 1000 °C, was spezielle Schutzmaßnahmen für das Trocknungsgut erfordert[41].

3. **Hochfrequenztrocknung** (=Dielektrische Trocknung): ein Mikrowellensender baut ein hochfrequentes elektrisches Feld auf, in welchem sich die Dipole des Wassers wie die des zu trocknenden Gutes entsprechend des Polaritätswechsels auszurichten versuchen. Die daraus resultierende Reibungswärme führt zu gleichmäßiger Erwärmung des Guts. Die thermische

Belastung kann gezielt gering gehalten werden. Es ist möglich, die Siedetemperatur der Flüssigkeit zu erreichen. Dieses Verfahren findet insbesondere im Endtrocknungsbereich Anwendung, da hier das Gut eine schlechte Wärmeleitfähigkeit besitzt. Umfangreiche Untersuchungen belegen, dass bei der Mikrowellentrocknung keine anderen Abbau- und Zersetzungsprodukte als bei der konventionellen Trocknung auftreten[41].

4. **Konvektionstrocknung**: Das zu trocknende Gut wird von einem warmen Luftstrom überzogen. Dampfbildung entsteht nur an der Oberfläche des Guts; die thermische Belastung ist gering.

5. **Wirbelschichttrocknung**: Es handelt sich um eine Sonderform der Konvektionstrocknung. Die zur Erwärmung des Gutes sowie zur Verdunstung der Flüssigkeit benötigte Energie rührt allein von der vorbeiströmenden Luft her, weshalb es sich hierbei um eine Trocknung unter adiabatischen Bedingungen handelt. Da der aufheizende Luftstrom gleichzeitig zum Auflockern des Schüttgutes dient, sind hohe Strömungsgeschwindigkeiten erforderlich. Daher verläuft der Phasenübergang als Verdunstung überall gleichmäßig, und die thermische Belastung des Schüttgutes ist äußerst gering.

2.4.3 Trocknungskinetik

Zur Beschreibung eines Trocknungsvorganges wird im allgemeinen der Feuchtegehalt des zu trocknenden Guts in Abhängigkeit von der Zeit dargestellt; der entsprechnende Funktionsgraph $w_{tr}(t)$ wird als **Trocknungsverlaufskurve** bezeichnet. Die Ableitung dieser Kurve nach der Zeit ergibt die **Trocknungsgeschwindigkeit** v_{tr}[36]:

$$v_{tr} = \frac{dw_{tr}(t)}{dt} \qquad (2.11)$$

v_{tr} Trocknungsgeschwindigkeit [%/min]
w_{tr} Feuchtegehalt [%]
t *Zeit [min]*

Wird die Trocknung eines *hygroskopischen kapillarporösen Schüttgutes* unter konstanten äußeren Bedingungen (Temperatur des Fluids wie der Umgebung, Volumenstrom, Luftfeuchtigkeit) durchgeführt, so sind theoretisch drei Abschnitte der Trocknung zu unterscheiden[37,38]:

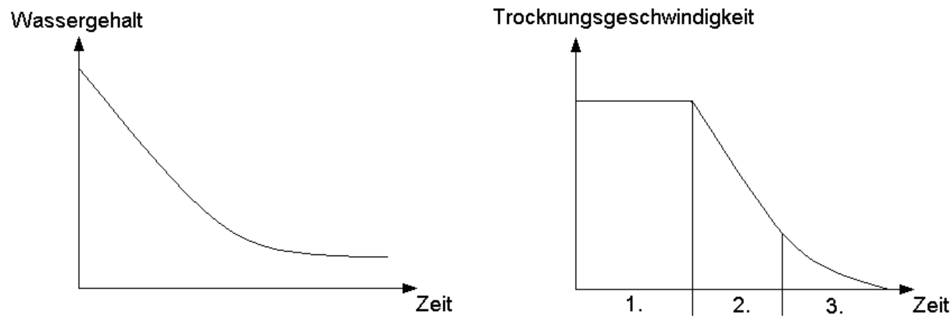


Abbildung 2-5 Zeitlicher Verlauf von Wassergehalt im Schüttgut sowie Trocknungsgeschwindigkeit[39]

<u>Erster Trocknungsabschnitt:</u>

⇨ Verdunstung der freien Feuchte der Oberfläche

⇨ An der Oberfläche der Partikeln verdunstende Flüssigkeit wird in ausreichendem Maß aus dem Inneren des Gutes nachgefördert

⇨ Verdunstungsrate wird allein durch Lufttemperatur, Luftfeuchte und Luftgeschwindigkeit bestimmt, nicht aber duch die Art des Gutes

⇨ Nach Beendigung eines thermischen Anlaufvorgangs, gekennzeichnet durch ein Einlaufen der Trocknungsverlaufskurve, nimmt das Gut die adiabatische Beharrungstemperatur an

⇨ Konstante Trocknungsgeschwindigkeit

⇨ Wärmeübertragung durch das Fluid nur an der Gutsoberfläche der Partikeln

⇨ Dieser Trocknungsabschnitt endet, wenn der kapillare Zug im Inneren der Partikeln nicht mehr ausreicht, um die an der Oberfläche verdunstende Flüssigkeitsmenge zu ersetzen

⇨ Die Gutsoberfläche weist nun den maximalen hygroskopischen Feuchtegehalt auf (d. h. denjenigen Wassergehalt, der sich bei einer relativen Feuchte von φ = 100 % durch Sorption von Feuchte an die Partikeloberfläche einstellt)

⇨ Da die Feuchte unterhalb der maximalen hygroskopischen Feuchte stärker gebunden ist, sinkt die Trocknungsgeschwindigkeit; der Knickpunkt in der Trocknungsverlaufskurve markiert das Ende des ersten Trocknungsabschnittes

⇨ Da die Kapillarkräfte insbesondere durch die Struktur der Partikeln bestimmt werden, ist die Dauer des ersten Trocknungsabschnitts nicht vorausberechenbar

<u>Zweiter Trocknungsabschnitt:</u>

⇨ Verdunstung kapillar stark gebundener Feuchte

⇨ Exponentiell abfallende Trocknungsgeschwindigkeit

⇨ Im Inneren des Gutes bilden sich Feuchtigkeitsprofile aus; die Schicht mit der maximalen hygroskopischen Feuchte wandert immer tiefer in die Partikeln

⇨ Der Feuchtigkeitsgehalt an der Oberfläche der Partikeln sinkt auf die Gleichgewichtsfeuchte mit der Trocknungsluft ab

- ⇨ Zusätzlich zum Wärmeübergang an der Oberfläche der Partikeln muss die Wärmeleitung in das Gut als Widerstand berücksichtigt werden
- ⇨ Da der Transport der Flüssigkeit aus den tiefen Partikelnschichten primär über Dampfdiffusion erfolgt, wird der Stoffübergang verlangsamt
- ⇨ Hat die Schicht mit der maximalen hygroskopischen Feuchte den tiefsten Punkt im Gut erreicht, so ist das Ende dieser Trocknungsstufe erreicht

Dritter Trocknungsabschnitt:

- ⇨ Das gesamte Gut zeigt hygroskopisches Verhalten
- ⇨ Die Trocknungsgeschwindigkeit nähert sich mit der Zeit asymptotisch dem Wert Null
- ⇨ Die Entsprechung von Dampfdruck im Innern des Schüttgutes mit dem Dampfdruck der Trocknungsluft markiert das Ende dieses Abschnittes
- ⇨ Eine weitere Trocknung ist unter diesen Bedingungen nicht möglich

Bei der Trocknung *nichthygroskopischer kapillarporöser Güter* wird eine Trocknungsverlaufskurve beobachtet, die eine Unterteilung in nur zwei Abschnitte erlaubt[40]. Die Trocknung ist hierbei mit dem vollständigen Verdunsten der letzten Flüssigkeitsmenge im Innern der Partikeln beendet; es stellt sich keine Gleichgewichtsfeuchte ein.
In der Literatur existieren zahlreiche Ausführungen über die Aufnahme von Trocknungsverlaufskurven bei Wirbelschichttrocknern[5], sowie Hinweise zur Beschreibung des Trocknungsverlaufs eines vollständigen WSG-Prozesses[52]. Für idealisierte Modelle finden sich in der Literatur Anweisungen zur Ermittlung der Trocknungszeit aus den Trocknungsverlaufskurven[40].

2.4.4 Temperatur- und Feuchtigkeitsverlauf während einer Trocknung

Der zeitliche Verlauf der Temperatur und der Feuchtigkeit der Abluft gibt Aufschluß über das Geschehen einer Trocknung. Wird eine WSG-Trocknung eines genügend feuchten Schüttgutes mit konstanten Werten von Zulufttemperatur und Volumenstrom durchgeführt, so resultiert folgender prinzipieller Verlauf der Abluftmesswerte[39]:

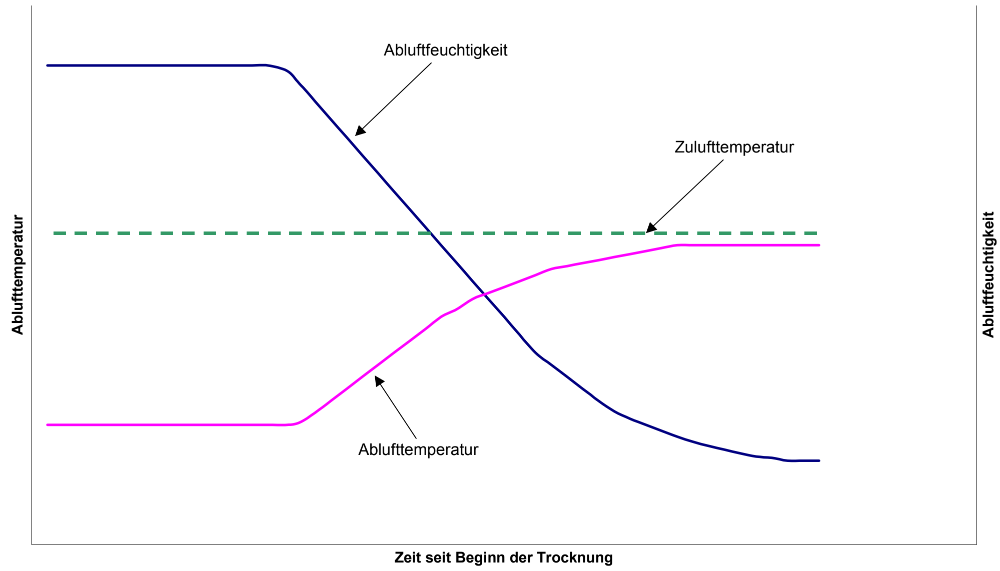


Abbildung 2-6 *Schematischer Verlauf von Temperatur und Feuchtigkeit der Abluft bei WSG-Trocknung*

Während des ersten Trocknungsabschnittes liegt die Abluftfeuchtigkeit nahe am Sättigungswert; mit Beginn des folgenden Abschnittes sinkt ihr Wert nahezu linear ab, um sich danach asymptotisch einem Endwert zu nähern. Das Trocknungsgut steht jetzt mit der Zuluft im Gleichgewichtszustand; eine Fortführung des Prozesses unter diesen Umständen würde keine Verbesserung des Trocknungsergebnisses mehr zur Folge haben.
Der Temperaturverlauf verhält sich spiegelbildlich zu dem der Abluftfeuchtigkeit: Während des ersten Trocknungsabschnittes hat die Ablufttemperatur einen konstant niedrigen Wert, der sogar unterhalb der Umgebungstemperatur liegen kann. Mit fortschreitender Trocknung während des zweiten Abschnitts steigt die Ablufttemperatur an, um sich schließlich asymptotisch der Zulufttemperatur anzunähern. Bedingt durch Wärmeverluste der Anlage liegt die Ablufttemperatur auch am Ende der Trocknung geringfügig unterhalb der Zulufttemperatur.

2.4.5 Faktoren, die die Trocknung beeinflussen

Der Verlauf einer Trocknung während eines WSG-Prozesses wird von mehreren, häufig nicht konstanten Faktoren beeinflusst:

Produkt:

- Das zu granulierende Material per se beeinflusst den Trocknungsprozess zum einen durch die Wechselwirkung mit der Flüssigkeit (hohe Bindungskräfte verzögern die Trocknung) zum anderen durch die spezifische Wärmekapazität sowie Wärmeleitfähigkeit. Letztere wird bei Granulaten allgemein als relativ schlecht bewertet[41]
- Die Korngrößenverteilung determiniert die Oberfläche des zu trocknenden Schüttguts und damit die für Stoffaustauschprozesse verfügbare Fläche

- Die Struktur und dabei insbesondere die Porosität der Granulen beeinflusst den intrapartikulären Flüssigkeitstransport, was sich insbesondere im zweiten Trocknungsabschnitt bemerkbar macht
- Die Wasserdampfsorptionsisotherme determiniert die erzielbare Restfeuchte des Granulats unter vorgegebenen Trocknungstemperaturen und -feuchtigkeiten

Prozesssteuerung:

- Die Einstellung von Feuchte und Temperatur des Fluidisierungsmediums bestimmen die Aufnahmefähigkeit des Trägergases für die zu entfernende Flüssigkeit. Während des ersten Trocknungsabschnittes besteht für konstante Zuluftfeuchten ein linearer Zusammenhang zwischen Trägergastemperatur und Trocknungsgeschwindigkeit
- Der Volumenstrom des Trägergases beeinflusst massivst die Trocknungsleistung
- Die Beladung der Anlage beeinflusst sowohl die Art der Fluidisierung als auch das Verhältnis von Gasmenge zu Trocknungsgutmenge. So ist zum Beispiel denkbar, dass das Trägergas bei zu hoher Beladung der Anlage schon weit vor dem oberen Ende des Wirbelbettes die maximale Flüssigkeitssättigung aufweist
- Die Rüttelintervalle der Rückhaltefilter beeinflussen ebenfalls die Trocknung, da während ihrer Bewegung trotz konstanter Gebläseleistung der Gesamtdurchsatz an Trägergas durch Schließen einer Abluftklappe verringert ist

WSG-Anlage:

- Die Konstruktion der Anlage beeinflusst durch die Geometrie, die Leistung des Gebläses und der Gestaltung des Anströmbodens das Fluidisierungsverhalten
- Die Größe der Wandflächen bestimmt die Wärmeabstrahlung der Anlage
- Es existieren Anlagen mit beheizbaren Wandflächen, die aufgrund des dadurch ermöglichten erhöhten Wärmeeintrages die Trocknung beschleunigen
- Es besteht die Möglichkeit, die Zuluft mit hohem technischen Aufwand bezüglich definierter Feuchtigkeit zu konditionieren *(„Econdry-Verfahren“*[42])

Aus diesen Überlegungen heraus ergeben sich folgende Konsequenzen für die Gestaltung eines Trocknungsprozesses:

⇒ *je stärker die Bindung des Wassers an das Gut ist, desto drastischer sind die erforderlichen Trocknungsbedingungen*

⇒ *je geringer die Partikelgröße und je höher die Kapillarität des zu trockenden Guts ist, desto leichter erfolgt die Trocknung*

⇒ *je besser der Wärmeübergang durch Konvektion, Kontakt oder Strahlung ist, desto effektiver wird die Trocknung sein*

⇒ *je größer die Differenz zwischen Wasserdampf-Partialdruck des Gutes und der Gasphase des Trockners ist, desto besser erfolgt die Trocknung*

2.4.6 Einfluss der Restfeuchtigkeit auf die Granulateigenschaften

Die folgende Übersicht verdeutlicht, wie die im Granulat verbleibende Restfeuchte die Qualität des Produktes beeinflusst[42 52]:

Tabelle 2-4 *Einfluß der Restfeuchte auf die Granulatbeschaffenheit*

Durch die Restfeuchte beeinflusste Parameter		
Fließgeschwindigkeit	Friabilität	Elektrostatische Aufladbarkeit
Chemische Haltbarkeit	Mikrobiologische Haltbarkeit	Wirkstoffgehalt
Schütt- und Stampfdichte	Zerfallszeit	Physikalische Haltbarkeit
Verpressbarkeit		

Ein Granulat muss folglich eine gewisse Restfeuchte aufweisen, um als Pressmasse verwendet werden zu können. Diese Feuchtigkeit muss für jede Rezeptur spezifisch definiert sein, um die Tablettierung reproduzierbar zu machen. In der Praxis hat sich gezeigt, dass innerhalb eines Wasseraktivitätsfensters von $0{,}2 < a_w < 0{,}6$ mit einem Minimum an Störungen zu rechnen ist. Es existieren jedoch auch Rezepturen, bei denen das Optimum der Wasseraktivität während der Verarbeitung nicht mit demjenigen der Haltbarkeit übereinstimmt; hierbei kann es erforderlich sein, die fertigen Tabletten schonend nachzutrocknen. Ein Wiederbefeuchten eines zuvor zu stark getrockneten Granulates auf die gewünschte Wasseraktivität hin führt nicht zwangsläufig zur gleichen Qualität.

2.4.7 Steuerung der Trocknung

Aufgrund der hohen Trocknungsgeschwindigkeiten in WSG-Anlagen ist eine exakte Steuerung des Trocknungsprozesses erforderlich, um einen definierten Wassergehalt im Produkt zu erzielen. Hierzu stehen gegenwärtig folgende Verfahren zur Verfügung:

Direkte Methoden: Bestimmung des Wassergehalts an Stichproben mittels

- Wägungen
- Karl-Fischer-Titration

Indirekte Methoden: Beendigung der Trocknung bei empirischen Werten

- der Trocknungszeit
- der Ablufttemperatur
- der Produkttemperatur, da die Ablufttemperatur (aufgrund des Einbau des Sensors räumlich entfernt vom Trocknungsort) zeitlich verzögert ermittelt wird
- der Abluftfeuchtigkeit
- der Differenz zwischen Austrittstemperatur und Kühlgrenztemperatur[42]

Alle diese Methoden haben den Nachteil, die eigentliche Zielgröße nicht direkt zu messen, sondern die Produktfeuchte nur mittels Prozessparametern einzuengen[92].
Das 1976 von der Ciba-Geigy entwickelte ECONDRY-Verfahren stellt eine Weiterentwicklung der über den Temperaturverlauf kontrollierten Trocknung dar[43]: Im ersten Trocknungsabschnitt wird die Zulufttemperatur konstant auf hohem, gerade noch produktverträglichem Niveau geregelt. Steigt die Ablufttemperatur zu Beginn des zweiten Trocknungsabschnitts an, so wird als neue Regelgröße eine konstante Produkttemperatur gewählt. Dem Trocknungsgut wird jetzt nur noch so viel Wärme zugeführt, wie zur Verdunstung des Wassers aus dem Inneren der Partikeln erforderlich ist. Zur Trocknung wird nun konditionierte Luft verwendet, deren relative Feuchte der geforderten Wasseraktivität des Produktes entspricht. Wenn Zu- und Abluft nahezu gleiche Temperaturen aufweisen, ist die Trocknung beendet. Dieses Verfahren bietet die Vorteile, dass das Trocknungsgut am Ende der Trocknung eine gleichmäßige Verteilung des Wassergehalts innerhalb eines Partikels aufweist und das Produkt am Ende des Prozesses mit einer niedrigeren Temperatur als bei den sonst üblichen Betriebsarten entnommen werden kann. Das ECONDRY-Verfahren hat sich jedoch aus Kostengründen nicht durchsetzen können[108].
1996 wurde von STEFFENS die Möglichkeit aufgezeigt, die Produktfeuchte während eines WSG-Prozesses mittels NIR-Spektroskopie zu überwachen und damit eine Steuerung des Prozesses zu entwickeln[44]. FRAKE publizierte 1997 die praktische Anwendung dieses Verfahrens[45]. Als Nachteil ist auch hier wiederum die Notwendigkeit einer produktspezifischen Kalibrierung zu nennen.

2.5 IN DER PRAXIS ETABLIERTE WSG-VERFAHREN

In der pharmazeutischen Praxis haben sich einige Bauformen von WSG-Anlagen durchgesetzt, die im Folgenden kurz erläutert werden.

2.5.1 Top-Spray-Verfahren

Bei diesem am weitesten verbreiteten Verfahren[46] wird eine Bindemittellösung von oben auf die zu granulierende Vorlage aufgesprüht, was den Namen **Gegenstromverfahren** begründet. Der Produktbehälter ist hierbei konisch gestaltet. Am Anströmboden ist der Strömungsquerschnitt am geringsten. Da sich dieser Querschnitt mit zunehmender Höhe vergrößert, nimmt die Strömungsgeschwindigkeit entsprechend ab. Im oberen Bereich strömen die fluidisierten Partikeln in Richtung der Behälterwand und gleiten dann an ihr zurück zum Anströmboden. Die unter Top-Spray-

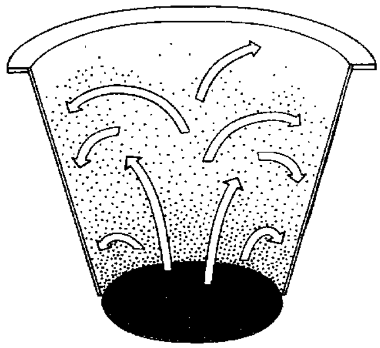


Abbildung 2-7 *Top-Spray-Wirbelschic*

Bedingungen hergestellten Granulen weisen im allgemeinen eine porösere Oberfläche und eine niedrigere Schüttdichte auf als jene, die mit anderen Verfahren produziert wurden. Die Batchgröße kann bis zu 1500 kg Primärpartikeln umfassen[46]. Mit dieser Technik ist auch ein Coaten möglich; die Qualität der so hergestellten Filmüberzüge reicht aber nicht an die anderer Verfahren heran.

2.5.2 Bottom-Spray-Verfahren nach Wurster

Dieses Verfahren findet fast ausschließlich zum Coaten Verwendung. FLÖGEL beschreibt jedoch auch die Anwendung zur Aufbaugranulation[47]. In einer zylindrischen Kammer, in der ein weiterer Zylinder mit halben Durchmesser der Außenkammer als Führungszylinder („*Steigrohr*") enthalten ist, befindet sich am Boden die in Strömungsrichtung justierte Sprühdüse[48]. Diese Granuliermethode wird daher auch als **Gleichstromverfahren** bezeichnet. Der Anströmboden besteht aus einer Lochplatte mit nach außen hin kleiner werdender Perforierung. Eine Beeinflussung des Systems ist zum einen durch die Änderung des Perforierungsmusters, zum anderen durch eine Variation des Abstandes von Anströmboden zum Führungszylinder möglich. Mit dem Wursterverfahren können besonders gleichmäßige Oberflächen auf den gecoateten Produkten erzielt werden. Auch ist auf diese Weise das Coaten von Partikeln mit Durchmessern unter 50 µm möglich. Die Ansatzgröße ist bei diesem Verfahren auf 600 kg begrenzt[46].

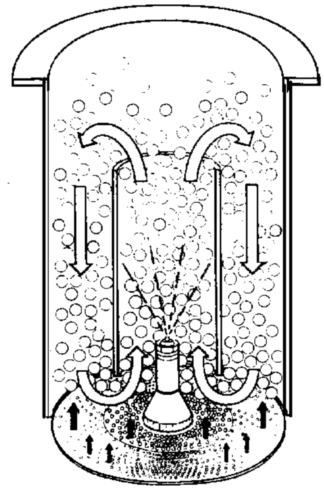


Abbildung 2-8 *Wurster-system*

2.5.3 Rotor-Verfahren

Durch eine Bodenrotorscheibe wird das Gut einer zentrifugalen Beschleunigung ausgesetzt[49]. Die Anströmluft passiert den Spalt zwischen Rotorscheibe und Gehäuse. Durch eine Höhenverstellung der Bodenrotorscheibe kann folglich die Anströmfläche vergrößert werden. Das Einsprühen der Bindemittellösung erfolgt entweder als Top-Spray- oder als Side-Spray-Verfahren. Im Gegensatz zu den zuvor erwähnten Ver-

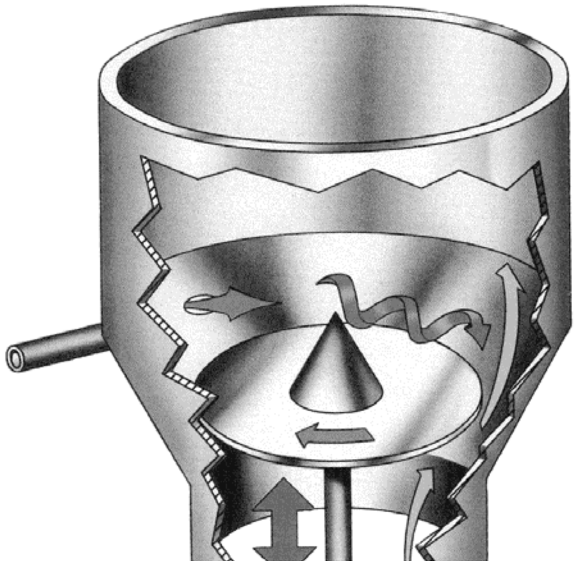


Abbildung 2-9 *Rotorverfahren mit Side-spray-Einrichtung*

fahren darf die Luftströmung während des gesamten Prozessablaufs nicht unterbrochen werden, da anderenfalls Granuliergut durch den Spalt zwischen Rotorscheibe und Gehäusewand durchfließen würde.

Das Rotor-Verfahren liefert sphärisch geformte, verdichtete Granulen. Der Feinanteil im Produkt ist geringer als bei anderen WSG-Verfahren. Die Qualität der Beschichtung ist vergleichbar mit dem Wurster-Verfahren. Das Rotor-Verfahren bedarf einer komplizierten Prozesssteuerung und weist nur geringe Produktionskapazitäten von maximal 250 kg auf[46].

2.6 NEUE ENTWICKLUNGEN AUF DEM GEBIET DES WSG-ANLAGENBAUS

2.6.1 Alternative Prozessgas-Verteilerböden

Im Frühjahr 2001 sind zwei neue Alternativen zum konventionellen siebförmigen Anströmboden für Wirbelschichtgranulierer vorgestellt worden. Beim Turbojet®-Treibsatz (Abb. 2-10) handelt es sich um einen Prozessgas-Verteilerboden mit radial verlaufenden Luftzufuhrschlitzen[50]. Die Zuluft wird in kreisförmige Bewegungen versetzt. Hieraus resultiert eine kontrollierte und schonende Produktbewegung ohne Produktruhezonen oder schädliche Turbulenzen. Das Einsprühen der Bindemittellösung erfolgt durch diverse, tangential am Verteilerboden installierte Düsen.

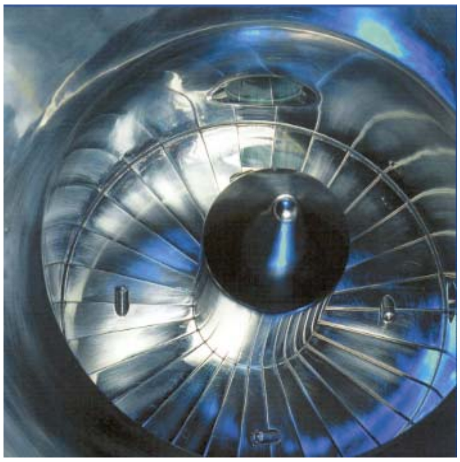


Abbildung 2-11 Turbojet®-Treibsatz

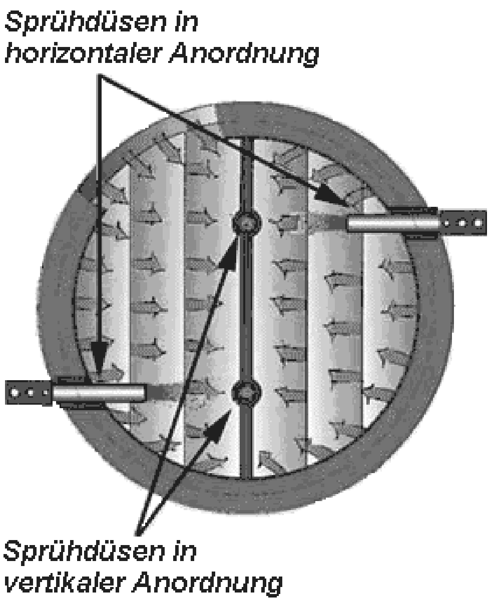


Abbildung 2-10 Innojet®-Anströmboden in der Aufsic

Der INNOJET®-Treibsatz besteht aus mehreren, sich überlappenden Leitflächen, zwischen deren spaltbildenden Abständen die Prozessluft zur kreisteilenden Mitte hin austritt[51]. Durch diese Luftzuführung wird ebenfalls eine Produktablagerung am Prozessgas-Verteilerboden unterbun-

den. Das Einsprühen der Bindemittellösung erfolgt bei diesem Verfahren sowohl durch horizontal als auch duch vertikal auf Höhe des Anströmbodens angeordnete Sprühdüsen.

2.6.2 3-Stoff-Sprühdüsen

Von der Firma Hüttlin GmbH ist ein neuartiger Sprühdüsentyp entwickelt worden, bei dem die mittels Druckluft zerstäubte Granulierflüssigkeit von einer eigens konditionierten Luft, dem sogenannten *Mikroklima*, umströmt wird. Diese zumeist feucht und kühl gehaltene Luft schirmt die zerstäubte Granulierflüssigkeit von der warmen und trockenen Prozessluft idealerweise so lange ab, bis die Bindemittellösung die Oberfläche des Schüttgutes erreicht hat. Hierdurch können Sprühtrocknungseffekte unterbunden werden. Aufgrund des schützenden Mikroklimas wird die Düse von Produkt- und Sprühflüssigkeitsablagerungen freigehalten; die eingestellte Tropfengrößenverteilung bleibt konstant und reproduzierbar.

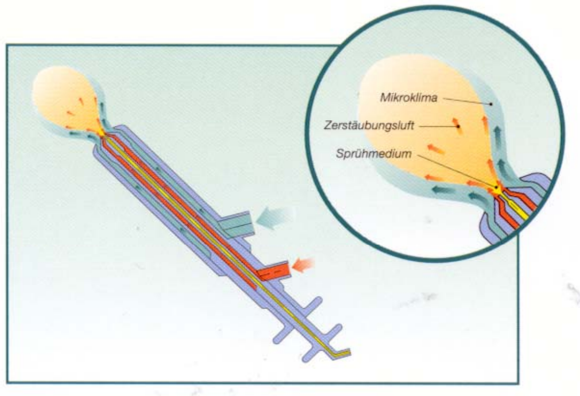


Abbildung 2-12 *Aufbau einer 3-Stoff-Sprühdüse*

2.6.3 WSG-Verfahren mit organischen Lösungsmitteln

Bei Verwendung organischer Lösungsmittel entstehen meist explosive Lösemitteldampf-Luft-Gemische. Es muss daher in solchen Fällen eine Inertisierung der Anlage mit Schutzgasen (z.B. Stickstoffgas) erfolgen. Dies birgt jedoch spezifische Nachteile im Hinblick auf Investitions- und Betriebskosten. In den letzten Jahren sind auch WSG-Anlagen mit Kreislauf-Lösemittelrückgewinnung entwickelt worden.

2.6.4 Vakuum-Wirbelschicht

Bei diesem Verfahren wird die Inertisierung der Anlage durch Unterdruckbedingungen realisiert[52]. Es handelt sich dabei um ein Kreislaufsystem. Mit der Vakuum-Technik ist es möglich, organische Lösungsmittel für WSG-Prozesse zu verwenden, ohne eine Inertbegasung betreiben zu müssen. Ein weiterer Vorteil besteht darin, mit sauerstoff- oder thermolabilen Stoffen WSG-Prozesse betreiben zu können. Ferner sind die Prozessbedingungen unabhängig von atmosphärischen Einflüssen.

2.6.5 Schmelzgranulation

Bei diesem Verfahren werden Bestandteile des zu granulierenden Schüttgutes durch die entsprechend aufgeheizte Zuluft angeschmolzen, wodurch der Aufbau von Bindemittelbrücken ermöglicht wird. Schmelzgranulationen können z.B. mit festen Polyethylenglykolen (PEG 1000 bis 6000) durchgeführt werden[53].

Von der Schmelzgranulation deutlich abzugrenzen ist die **Sprüherstarrung** (synonym *Sprühverperlung*), bei welcher eine Hilfsstoffschmelze oder auch eine Wirkstoffsuspension in einen kühlenden und damit zur sofortigen Erstarrung führenden Luftstrom eingesprüht wird[54]. Im Vergleich zu konventionellen Schmelzerstarrungsverfahren bietet diese Methode den Vorteil, sphärische Partikeln mit guter Einhüllung von Feststoffen in nur einem Arbeitsgang zu erhalten.

2.6.6 WSG-Anlagen mit Mikrowellenheizung

Von DOELLING und NASH wurde 1992 eine WSG-Anlage im Labormaßstab entwickelt, bei welcher der Trocknungsprozess durch einen Mikrowellenstrahler forciert wird[55]. Da sowohl das zu trocknende Schüttgut als auch die Fluidisierungsluft die Mikrowellenenergie absorbieren, erfolgt ein sehr effizienter Wärmeeintrag in die Anlage, und die Trocknungsgeschwindigkeit kann hierdurch auf den sechsfachen Wert im Vergleich zu einer konventionellen Anlage gesteigert werden. Durchschnittlich 77 % der eingestrahlten Mikrowellenenergie stehen für das Aufheizen bzw. das Trocknen des Gutes zur Verfügung. Für das Scale Up wird eine Mikrowellenleistung von 100 bis 125 W pro Liter Schüttgut postuliert.

2.6.7 Kontinuierliche WSG-Anlagen und Sonstige Neuentwicklungen

Da batchweise Produktion in herkömmlichen WSG-Anlagen mit einem nicht geringen personellen Aufwand verbunden ist, bestehen schon lange Bestrebungen, fortdauernd arbeitende Prozesse zu etablieren. Bereits 1964 publizierte eine Arbeitsgruppe um Scott die Entwicklung eines kontinuierlich arbeitenden Wirbelschichtgranulierers[56]. Die Anlage basierte auf dem Top-Spray-Verfahren. Die Zuführung der Primärpartikeln erfolgte über eine Förderschnecke unmittelbar unterhalb der Sprühdüse; der Produktaustrag wurde über eine Öffnung oberhalb des Anströmbodens realisiert, erlaubte aber keine Klassierung. Ausführlichere Untersuchungen zu kontinuierlich betriebenen WSG-Anlagen gehen auf ORMÓS zurück, welcher 1975 eine Laboranlage vorstellte[57]. Die Partikeln hatten in der nach dem Top Spray-Verfahren arbeitenden Anlage eine durchschnittliche Verweildauer von 30 Minuten. 1985 wurde ein permanent arbeitendes Produktionsverfahren in die pharmazeutische Industrie eingeführt, bei welchem extern hergestellte Schüttgutmischungen zusammen mit der Agglomerierflüssigkeit einem Vertikalgranulie-

rer zugeführt werden und abschließend das feuchte Granulat in einen vibrationsunterstützten, kontinuierlichen Wirbelschichttrockner überführt wird[58]:

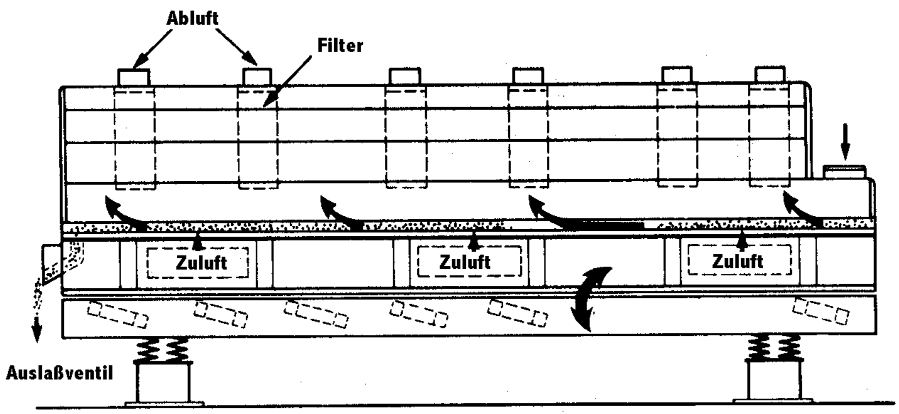


Abbildung 2-13 *Kontinuierlich arbeitender Wirbelschichttrockner*

Der Wirbelschichttrockner versetzt das feuchte Granulat durch starkes Vibrieren des Bodens der Trocknerkammer und gleichzeitiges Einblasen erhitzter Luft von unten in eine Art Wirbelbettzustand. Durch die Vibrationen werden Blasen- oder Kanalbildungen innerhalb der Wirbelschicht unterbunden[59]. Da über die Länge der Wirbelschichtkammer hinweg ein Temperaturgradient der Zuluft geschaffen wird, kann das Produkt am Anfang schnell mit heißer Luft angetrocknet werden, um dann im weiteren Prozessverlauf schonend weiter zu trocknen und abzukühlen. Der Schüttguttransport erfolgt durch das Zusammenwirken von Vibration des Bodens und Umlenken des Luftstroms. Ein Vorteil dieses Systems besteht in der Tatsache, dass hier deutlich weniger heiße Luft zum Fluidisieren benötigt wird als bei konventionellen WSG-Anlagen, was ein Energiesparpotential darstellt. Als Nachteil steht dem jedoch eine gegebenenfalls stark schwankende Verweilzeit der Einzelpartikeln in der Trockenkammer gegenüber: Granulatkörner mit zu geringer Aufenthaltsdauer verlassen die Anlage in feuchtem Zustand, während andere durch die thermische Belastung Qualitätsmängel erleiden könnten. Als weiterer Nachteil ist im Vergleich zu herkömmlichen WSG-Anlagen schlechte Mischgüte zu nennen[60].

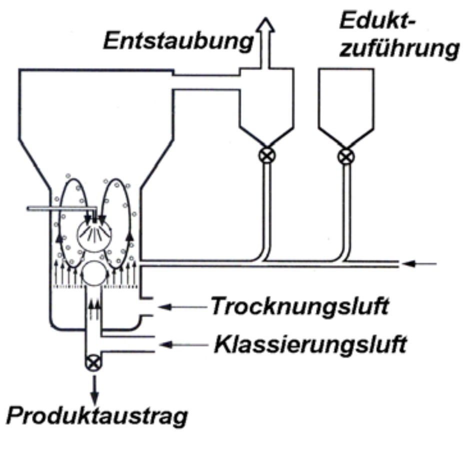


Abbildung 2-14 *Schema einer AGT-Anlage*

1993 wurde eine Anlage in die pharmazeutische Produktion eingeführt, die als *„Anlage zur Granuliertrocknung“* AGT bezeichnet wird[61]. Die AGT-Anlage arbeitet vergleichbar mit einem Top-Spray-System. Zum Anfahren des Prozesses besteht die Notwendigkeit, Startkörner zu-

zugeben. Die kontinuierliche Zuführung der Primärpartikeln erfolgt mit einem Trägerluftstrom. Da die Porosität des Anströmbodens nach außen hin zunimmt, wird ein ansteigender Strömungsgradient geschaffen, welcher die Klassierung des Schüttgutes erleichtert. In der Mitte des Anströmbodens ist Produktaustragsrohr eingebaut, in welchem Klassierungsluft aufsteigt. Bei dieser Windsichtung ist die Größe der klassierten Partikeln eine Funktion der Luftströmungsgeschwindigkeit. In der Abluft enthaltener Staub wird über ein Zyklon abgeschieden und dem Prozess wieder zugeführt.

Es sind heutzutage WSG-Anlagen mit vollautomatischem, validierbarem, GMP-konformem Reinigungsablauf (Clean In Place = **CIP**) verfügbar. Allein die konventionellen Filter müssen noch manuell ausgetauscht werden, da sie nicht CIP-fähig sind. Alle übrigen Reinigungsschritte erfolgen jedoch im geschlossenen Zustand der Anlagen ohne manuelle Eingriffe.

Trotz aller Innovationen auf dem Gebiet des WSG-Anlagenbaus ist gegenwärtig keine Steuerung verfügbar, die unabhängig von der Beschaffenheit der Frischluft den Granulationsprozeß so zu steuern vermag, dass zielsicher ein Produkt definierter Qualität erhalten wird.

2.7 EINFLUSSFAKTOREN DER WIRBELSCHICHT-GRANULATION

Aufgrund der Komplexität des Verfahrens werden Wirbelschichtgranulationen von einer Vielzahl von Faktoren beeinflusst. Diese lassen sich in drei Teilbereiche untergliedern[62]:

Tabelle 2-5 *Einflußfaktoren auf den WSG-Prozess*

<table>
<tr><th>Apparative Parameter</th><th>Prozess-Parameter</th><th>Produkt-Parameter</th></tr>
<tr><td>Anströmboden</td><td>Beladung</td><td>Art des Bindemittels</td></tr>
<tr><td>Form des Ansatzbehälters</td><td>Volumenstrom des Fluidisierungsmediums</td><td>Masse des Bindemittels</td></tr>
<tr><td>Sprühdüsentyp</td><td>Zulufttemperatur</td><td>Art der Bindemittellösung</td></tr>
<tr><td>Position der Sprühdüse</td><td>Zuluftfeuchtigkeit</td><td>Konzentration der Bindemittellösung</td></tr>
<tr><td>Saug- oder Druckbetrieb</td><td>Sprühwinkel</td><td>Temperatur der Bindemittellösung</td></tr>
<tr><td rowspan="5">Scale-up</td><td>Sprühgeschwindigkeit</td><td rowspan="5">Ausgangsmaterial
• Fluidisierbarkeit
• Hydrophilie
• Korngrößenverteilung</td></tr>
<tr><td>Sprühluftdruck</td></tr>
<tr><td>Tröpfchengröße der Sprühflüssigkeit</td></tr>
<tr><td>Höhe des Wirbelbetts</td></tr>
<tr><td>Prozessdauer</td></tr>
</table>

Den bedeutendsten Einfluß auf das Ergebnis eines WSG-Prozesses hat die Zugabecharakteristik der Agglomerationsflüssigkeit. So kann im Extremfall

das Einsprühen der Bindemittellösung zu dessen Sprühtrocknung ohne Aufbauagglomeration führen[46, 56]. Dies kann insbesondere beim Top-Spray-Verfahren beobachtet werden: Die von oben aufgesprühten Tröpfchen treten zuerst mit der Abluft in Kontakt, bevor sie sich an die hochgewirbelten Pulverpartikeln anlagern[47]. Das Einsprühen der Bindemittellösung im Gleichstromverfahren erhöht hingegen die Wahrscheinlichkeit einer Absorption der Flüssigkeit durch die Partikeln. Eine herausgehobene Bedeutung für das Resultat einer WSG-Granulierung haben weiterhin die Parameter Zulufttemperatur, Volumenstrom des Fluids sowie der Sprühluftdruck. Unter der Voraussetzung, dass alle anderen Versuchsparameter konstant gehalten werden, gelten allgemein die folgenden Abhängigkeiten:

- *Je höher die **Sprührate** der Bindemittellösung, desto höher die Bildungswahrscheinlichkeit von Flüssigkeitsbrücken, desto größer der resultierende mittlere Partikeldurchmesser*[63, 54, 64]
- *Je größer die **Oberfläche** und je stärker das **Wasseraufnahmevermögen** des Schüttgutes, desto weniger Flüssigkeit steht an der Partikeloberfläche für die Ausbildung von Flüssigkeitsbrücken zur Verfügung, was zu einer abnehmenden mittleren Partikelgröße führt*[65]
- *Je größer die **Sprühtropfengröße**, desto größer der mittlere Partikeldurchmesser des Endprodukts*[66, 72]
- *Je größer die **Sprühtropfengröße**, desto breiter die Partikelgrößenverteilung des Produkts*[63]
- *Je höher der **Sprühluftdruck**, desto geringer wird die mechanische Belastbarkeit des Granulates, und dementsprechend nimmt der Abrieb des Endprodukts zu*[67,68]
- *Je höher der **Wassergehalt des Schüttgutes** in der Granulationsphase, desto höher die resultierende Dichte des Produkts*[46]
- *Je höher die **Feuchtigkeit der Zuluft**, desto größer der mittlere Partikeldurchmesser des Endprodukts*[63]
- *Je höher die **relative Feuchte der Zuluft**, desto höher die Lockerungsgeschwindigkeit*[69]
- *Je niedriger der **Feuchtegehalt der Zuluft**, desto höher die elektrostatische Aufladung der Partikeln, was zu unkontrollierter Agglomeration führen kann*[46]
- *Je geringer der **Abstand der Sprühdüse zum Wirbelbett**, desto gleichmäßiger wird der Bindemittelfilm*[46]
- *Je geringer der **Abstand der Sprühdüse zum Wirbelbett**, desto größer wird der resultierende mittlere Partikeldurchmesser*[54]
- *Je höher die **Bindemittelkonzentration** in der Sprühflüssigkeit, desto größer der mittlere Partikeldurchmesser des Produkts*[70]
- *Das Aufsprühen einer Lösung des Bindemittels (**Klebstoffgranulation**) führt zu stärkerem Kornwachstum als bei einer unter gleichen Bedingungen durchgeführten Krustengranulation*[54, 70]
- *Je größer die **Temperaturdifferenz zwischen Zuluft- und Produkttemperatur** während der Granulationsphase, desto niedriger der mittlere Partikeldurchmesser des Produkts*[71]

- *Je größer die **Masse des Bindemittels**, desto größer der mittlere Partikeldurchmesser des Produkts*[72]
- *Je breiter die **Korngrößenverteilung der Primärpartikeln**, desto geringer die Porosität und desto höher die Bruchfestigkeit der Granulen*[24]
- *Je geringer der **Füllungsgrad** der Anlage, desto gleichmäßiger die Verteilung der Sprühflüssigkeit während der Granulationsphase und desto enger die Partikelgrößenverteilung des Endprodukts*[71, 72]

Als Beispiel für den Einfluß eines Scale Up sei der Hinweis von Jones[46] erwähnt, die Soll-Dichte des Produkts im Labormaßstab mindestens 20 % unterhalb des erwünschten Wertes anzusetzen, der später auf der Produktionsanlage erzielt werden soll.

2.8 METHODEN ZUR BESTIMMUNG DES WASSERGEHALTS IN FESTSTOFFEN

Die Kenntnis der Feuchtigkeit in Feststoffen ist für die technologische Entwicklung, die Produktion sowie die Lagerung des Produkts von entscheidender Bedeutung. Im Folgenden werden daher die verfügbaren Bestimmungsmethoden kurz vorgestellt und bewertet.

2.8.1 Gravimetrische Verfahren

Das Prinzip dieser Bestimmungsverfahren besteht darin, aus einer feuchten Probe das Wasser möglichst quantitativ zu entfernen und aus der Gewichtsdifferenz zwischen wasserhaltiger und wasserfreier Probe auf den ursprünglichen Wassergehalt zu schließen. Alle diese Verfahren sind mit dem Nachteil behaftet, keine Unterscheidung zwischen Wasser und anderen flüchtigen Komponenten, wie z.B. organischen Lösungsmitteln zu treffen. Ein weiteres Manko stellt der teilweise hohe Zeitbedarf von bis zu 4 Stunden pro Probe dar.

2.8.2 Bestimmung des ausgetriebenen Wassers

Die Spezifität der Wassergehaltsbestimmung kann erhöht werden, indem die flüchtigen Komponenten aus der Probe ausgetrieben werden, nachfolgend der Wasseranteil quantitativ von einem Absorber aufgenommen und dessen Massenzunahme ermittelt wird. Von der Firma ARIZONA Instrument Corp wird seit 1997 ein Messgerät angeboten, welches die Feuchtigkeit der Probe mit Stickstoff oder wahlweise getrockneter Luft entfernt und die Masse des ausgetriebenen Wassers mit einem Feuchtigkeitssensor in der Abluft detektiert[73]. Mit diesem Verfahren sind Messungen bis zum ppm-Bereich möglich. Bei hohen Wassergehalten kann eine azeotrope Destillation durchgeführt werden.

2.8.3 Karl-Fischer-Titration

Die von dem deutschen Chemiker FISCHER 1935 entwickelte Titration ist eine der genauesten Labormethoden zur Bestimmung des Wassergehalts eines Stoffes. Bei dieser Methode wird sowohl freies, als auch gebundenes Wasser (z.B. Kristallwasser) erfasst. Bei DAB-konformer Bestimmung sollen zwischen 5 und 30 mg Wasser während einer Titration erfasst werden. Durch Stoffe, die mit Iod reagieren, wird die Bestimmung gestört.

2.8.4 Calciumcarbid-Methode

Die Bildung von Ethin aus Calciumcarbid kann für eine sehr präzise Wassermassenbestimmung herangezogen werden: Die Probe wird in eine Druckflasche mit einer Calciumcarbidampulle überführt. Nach Zerstören der Ampulle kommt es zur Bildung des Ethins, aus welchem ein Druckanstieg in dem Behälter resultiert. Dieser wird an einem Manometer abgelesen und ist streng proportional der Stoffmenge des in der Probe enthaltenen Wassers. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit des Behälterinnendrucks ist eine Temperaturkonstanz Voraussetzung für eine exakte Bestimmung.

2.8.5 Dielektrizitätsmessungen

Die Kapazität eines Plattenkondensators ist von dem Medium zwischen den beiden Platten abhängig: Beträgt die Kapazität bei Vakuum C_0, so ändert sich ihr Wert nach Einbringen einer Testsubstanz auf C. Das Verhältnis dieser beiden Werte wird als relative Dielektrizitätskonstante ε_r bezeichnet und stellt ein Maß für die Wechselwirkung des elektrischen Feldes mit den Molekülen der Substanz dar.

$$\varepsilon_r = \frac{C_{Mat}}{C_0} \qquad (2.12)$$

ε_r *Dielektrizitätskonstante [dimensionslos, bei 20 °C]*
C_0 *Kapazität des Kondensators bei Vakuum zwischen den Platten [F]*
C_{Mat} *Kapazität des Kondensators mit Material zwischen den Platten [F]*

Je polarer eine Substanz ist, desto größer ist ihre relative Dielektrizitätskonstante. Der stoffspezifische Wert von ε_r liegt für Gase bei ca.1, für trockene Nichtleiter zwischen 2 und 10. Die relative Dielektrizitätskonstante von Wasser[74] liegt mit 80,4 deutlich über dem zuvor benannten Bereich. Es kann somit eine Korrelation zwischen der relativen Dielektrizitätskonstante eines Schüttgutes und dessen Wassergehalt ermittelt werden. Die entsprechenden Messgeräte bestehen aus einem Messkondensator mit einer Schaltung zur Bestimmung kleiner Kapazitätsänderungen. Da die Leitfähigkeit des Probenmaterials das Messergebnis beeinflusst, wird die Messung mit hochfrequenter Wechselspannung betrieben. Die Verteilung des Wassers in der Probe hat keinen Einfluß auf die Messung; es wird vielmehr automatisch ein Mittelwert bestimmt. Zwar bieten derartige Messungen den Vorteil extrem kurzer Mess-

zeiten, dem steht jedoch der Nachteil gegenüber, für jedes Schüttgut eine eigene Kalibriergerade erstellen zu müssen, da die Partikelgrößenverteilung das Messergebnis beeinflusst.

2.8.6 Infrarot-Wassergehaltsbestimmung

Die absorptionsspektroskopische Bestimmung des Wassers erfolgt bei den Wellenlängen 1,93 µm und 1,45 µm. Zusätzlich wird bei guten Messgeräten mit einer weiteren Wellenlänge gearbeitet, bei der Wasser nicht absorbiert, um so Störeffekte durch Eigenabsorption des Messgutes zu korrigieren. Auch bei diesem Verfahren ist eine stoffspezifische Kalibrierung erforderlich.

2.8.7 NIR-Wassergehaltsbestimmung

Bei der NIR-Spektroskopie wird die Absorption elektromagnetischer Strahlung im nahen Infrarotbereich gemessen. Dieses Intervall erstreckt sich über den Wellenzahlenbereich von 13.000 cm^{-1} bis 4000 cm^{-1} [75]. Die NIR-Methode ermöglicht schnelle, kontakt- und zerstörungsfreie Messungen, die mit einer Faseroptik auch über größere Distanzen realisiert werden können. Da die Absorptionen im NIR relativ schwach sind, können Proben mit einer Schichtdicke von 1 bis 10 mm in Transmission vermessen werden. Feststoffe können im NIR mittels diffuser Reflexion praktisch ohne Probenvorbereitung untersucht werden. Dies kann z.B. durch Eintauchen von Glasfasersonden in die Probe erfolgen. Um Wasser zu detektieren, wird eine Messwellenlänge von 1990 nm empfohlen; eine simultane Hintergrundmessung kann z.B. bei 1740 nm durchgeführt werden[76]. NIR-Messungen erfordern produktspezifische, zumeist nichtlineare Kalibrierungen. Da sich im Verlauf eines WSG-Prozesses durch die Zugabe des Bindemittels die stoffliche Zusammensetzung des Produktes ändert, sind unterschiedliche Kalibrierungen für die Spray- und die Trockenphase erforderlich. Zusätzlich beeinflussen Partikelgrößenverteilung und Schüttdichte die Messung[*].

2.8.8 Mikrowellen-Absorption

Das Messprinzip ist mit dem der IR-Bestimmung identisch. Die Wellenlängen liegen bei diesen Verfahren im cm-Bereich (entsprechend einer Frequenz im Bereich 2,6 bis 4 Gigahertz). Ein 1994 vorgestelltes Messverfahren beruht auf der Veränderung der Resonanzfrequenz eines Mikrowellenresonators[77]. Es ist damit möglich, die beiden Größen Frequenzverschiebung und Absorption zu messen. Durch multifrequente Messung und Berücksichtigung von Phasenverschiebung und Dämpfung können Fehler minimiert werden[78]. Der Vorteil der Mikrowellen-Absorptionsmessung besteht darin, dass das Produkt vollständig durchdrungen wird und die Oberflächenstruktur der Partikeln keinen Einfluß auf das Messergebnis hat. Es ist weiterhin vorteilhaft, dass dieser

[*] *NIR-Methoden werden auch zur Bestimmung der Korngröße eines Schüttgutes verwendet*

Sensortyp unmittelbar den Messwert liefert, also keine zeitliche Verzögerung des Messsignals verursacht. Ein Nachteil besteht jedoch darin, dass Wasser nur bis zu einer Tiefe von ca. 5 cm in die Produktschicht hinein detektiert werden kann[79]. Dieses Feuchtemessverfahren kann daher bei größeren Probenvolumina nur unter der Voraussetzung eines räumlich konstanten Feuchtegehalts angewendet werden. Ein weiteres Manko besteht in der Tatsache, dass nur nichtleitendes Material durchstrahlt werden kann. Die Mikrowellen-Feuchtemessung erfordert eine produktspezifische Kalibrierung. Voraussetzung für nachfolgende Messung ist dabei eine konstante Schüttdichte und Porosität des Messmediums. Mit Mikrowellenfeuchtesensoren ist es daher möglich, z.B. in Rohrleitungen mit konstantem Materialfluss zu arbeiten, nicht aber in der sich ändernden Beladung eines Wirbelschichtgranulierers[80].

2.8.9 Leitfähigkeitsmessverfahren

Die elektrische Leitfähigkeit eines im trockenen Zustand nichtleitenden Stoffes nimmt mit steigendem Wassergehalt zu. Die Abnahme des Widerstandes bei geringen Wassergehalten erfolgt zunächst in mehreren Zehnerpotenzen, um mit steigender Feuchtigkeit der Probe immer weiter abzuflachen. Leitfähigkeitsmessverfahren sind bei ungleichmäßiger Wasserverteilung, sehr niedrigen sowie sehr hohen Wassergehalten ungeeignet. FUNAKOSHI beschreibt die Anwendung dieses Messverfahrens bei einer WSG-Anlage[81]. Die Anode taucht in die Wirbelschicht ein, die Gefäßwand fungiert als Kathode. Die Messung erlaubt allein Aussagen über die an der Oberfläche gebundene Feuchtigkeit. Nachteilig ist hierbei die Notwendigkeit einer produktspezifischen Kalibrierung.

2.8.10 Neutronenstrahlung

Das Prinzip dieser Messung beruht darauf, dass schnelle Neutronen durch Streuung an den gleich schweren Wasserstoffkernen abgebremst werden, jedoch bei der Streuung an Atomkernen höherer Masse kaum an Geschwindigkeit verlieren. In der Umgebung einer Quelle für schnelle Neutronen (üblicherweise Americum-Beryllium-Mischungen) entsteht eine Wolke langsamer Neutronen, deren Konzentration im wesentlichen nur vom Wasserstoffgehalt des umgebenden Volumens abhängt. Durch die Kombination eines derartigen Neutronenemitters mit einem Messorgan für langsame Neutronen (üblicherweise ein ^{3}He-Zählrohr) wird eine Feuchtesonde erhalten. Die Neutronenbremsung bleibt unbeeinflusst von Temperatur, Druck, pH-Wert, Porosität und chemischer Bindung des Materials. Da bei dem System sowohl Kristallwasser als auch chemisch gebundener Wasserstoff mit erfasst werden, ist auch bei diesem Messverfahren eine produktspezifische Kalibrierung erforderlich. Die Anzeige ist näherungsweise proportional zur Feuchte in Volumenprozent. Die Feuchte in Gewichtsprozent entspricht dem Quotienten aus Volumenfeuchte und Materialdichte. Die Sonde ist so zu installieren, dass die eingebaute Neutronenquelle entsprechend dem Wirkungsvolumen ausrei-

chend von Material umgeben ist. Bei einer Volumenfeuchte von 10 % beträgt die Reichweite schneller Neutronen ca. 40 cm[82].

2.9 METHODEN DER FEUCHTIGKEITSBESTIMMUNG IN GASPHASEN

Die Kenntnis der Feuchtigkeit in Gasen und speziell in der Luft ist für die Entwicklung, Herstellung und Lagerung von Arzneimitteln essentiell. Insbesondere für die Massenbilanzierung einer Wirbelschichtgranulierung ist diese Messgröße der Zu- und Abluft die Grundlage aller folgenden Berechnungen. Es existiert eine Vielzahl unterschiedlicher Messprinzipien für die Bestimmung[83].

2.9.1 Maße für die Luftfeuchtigkeit

Der thermodynamischen Beschreibung feuchter Luft werden folgende Modellannahmen zugrunde gelegt[84]:

- *Die Gasphase besteht aus einer inerten (=Reinluft) und einer kondensierbaren Komponente (=Wasser). Diese Gasphase verhält sich wie ein Gemisch idealer Gase*
- *Die Luft ist unlöslich in kondensiertem Wasser*
- *Falls Kondensat vorhanden ist, so gilt nach Erreichen des Sättigungszustandes, dass der Wasserdampfpartialdruck p_w des Wasserdampfes gleich dem Sättigungsdampfdruck reinen Wassers ist (p_w ist unabhängig vom Gesamtdruck p)*

Im Fall ungesättigter feuchter Luft ist kein kondensiertes Wasser vorhanden. Entsprechend des Daltonschen Gesetzes breiten sich der Wasserdampf (=Gas, kein Kondensat) und die Luft im Raum so aus, als wenn sie allein vorhanden wären. Experimentell könnte man den Wasserdampfpartialdruck p_w herstellen, indem man im gleichen Volumen zunächst ein Vakuum herstellt und danach die identische Masse Wasser verdampft.
Nach dem Gesetz von DALTON setzt sich der Druck einer Mischung idealer Gase aus der Summe der Partialdrucke aller beteiligten Gase zusammen. Für den Spezialfall feuchter Luft gilt analog, dass die Summe aus Wasserdampfpartialdruck und Partialdruck der trockenen Luft den Gesamtdruck feuchter Luft ergibt

$$p = p_w + p_L \tag{2.13}$$

p *Gesamtdruck feuchter Luft [Pa]*
p_w *Wasserdampf-Partialdruck [Pa]*
p_L *Partialdruck der trockenen Luft [Pa]*

Das Verhältnis des Wasserdampf-Partialdrucks zum Sättigungsdampfdruck bei dieser Temperatur wird als **relative Luftfeuchtigkeit** φ bezeichnet

$$\varphi = \frac{p_W}{p_D} \qquad (2.14)$$

p_w *Wasserdampf-Partialdruck [Pa]*
p_D *Sättigungsdampfdruck [Pa]*
φ *Relative Luftfeuchtigkeit [%]*

Da der Sättigungsdampfdruck unabhängig vom atmosphärischen Luftdruck ist, ist auch die Angabe der relativen Feuchte unabhängig vom Gesamtdruck.

Neben dem Wasserdampfpartialdruck existieren eine Reihe weiterer abgeleiteter Maße für die Charakterisierung einer Wasserdampf-Luft-Mischung[85],[86]. Das Verhältnis der Wassermasse pro Volumen feuchter Luft wird als **absolute Luftfeuchtigkeit f** bezeichnet (synonym: *absolute Feuchte, absolute humidity*) und ist in der Physik üblich:

$$f = \frac{m_W}{V_f} \qquad (2.15)$$

m_W *Masse Wasser [g]*
V_f *Volumen feuchter Luft [m³]*
f *Absolute Luftfeuchtigkeit [g/m³]*

Die **spezifische Luftfeuchtigkeit χ_f** als weiteres absolutes Feuchtemaß gibt an, wie viel Gramm Wasser pro Kilogramm feuchter Luft enthalten sind:

$$\chi_f = \frac{m_W}{m_{TL} + m_W} \qquad (2.16)$$

m_W *Masse Wasserdampf [g]*
m_{TL} *Masse trockene Luft [kg]*
χ_f *Spezifische Luftfeuchtigkeit [g/kg]*

In der Thermodynamik wird der Wassergehalt feuchter Luft hingegen durch das Verhältnis der Masse an Wasserdampf zu der Masse an trockener Luft ausgedrückt. Diese Definition ist zweckmäßig, da die Masse der trockenen Luft bei Feuchte- und Temperaturänderungen konstant bleibt. Dies erleichtert die rechnerische Verfolgung von Zustandsänderungen. Die Definition des **Feuchtigkeitsgehalt**s χ (synonym: *Feuchtegrad, Feuchtebeladung*[87]*, Mischungsverhältnis, Feuchtigkeitsverhältnis, moisture content, humidity ratio*) lautet damit:

$$\chi = \frac{m_W}{m_{TL}} \qquad (2.17)$$

m_W *Masse Wasserdampf [g]*
m_{TL} *Masse trockene Luft [kg]*

χ *Feuchtigkeitsgehalt [g/kg]*

Da viele handelsübliche Messgeräte die Rohdaten als spezifische Luftfeuchtigkeit χ_f liefern, alle thermodynamischen Rechnungen aber auf dem Feuchtigkeitsgehalt χ basieren, ist die Umrechnung beider Größen erforderlich. Gleichung 2.17 kann wie folgt umgeformt werden:

$$\chi = \frac{m_W}{(m_{TL} + m_W) - m_W} \tag{2.18}$$

Ausgehend von 2.16 folgt:

$$\chi_f \cdot (m_{TL} + m_W) = m_W$$

Einsetzen dieser Gleichung in 2.18 führt damit zu

$$\chi = \frac{\chi_f \cdot (m_{TL} + m_W)}{(m_{TL} + m_W) - \chi_f \cdot (m_{TL} + m_W)}$$

$$\boxed{\chi = \frac{\chi_f}{1 - \chi_f}} \tag{2.19}$$

Da die spezifische Luftfeuchtigkeit χ_f in der Einheit g/kg definiert ist, in Gleichung 2.16 jedoch Verhältnisse verrechnet werden, ist bei der Anwendung dieser Formel noch jeweils der Faktor 1000 einzufügen. Beispiel:

$$\chi_f = 250\, g / kg$$

$$\chi = \left(\frac{\frac{250}{1000}}{1 - \frac{250}{1000}} \right) \cdot 1000$$

$$\chi = 333{,}3\, g / kg$$

Das folgende Diagramm verdeutlicht den Zusammenhang zwischen spezifischer Luftfeuchtigkeit und Feuchtigkeitsgehalt:

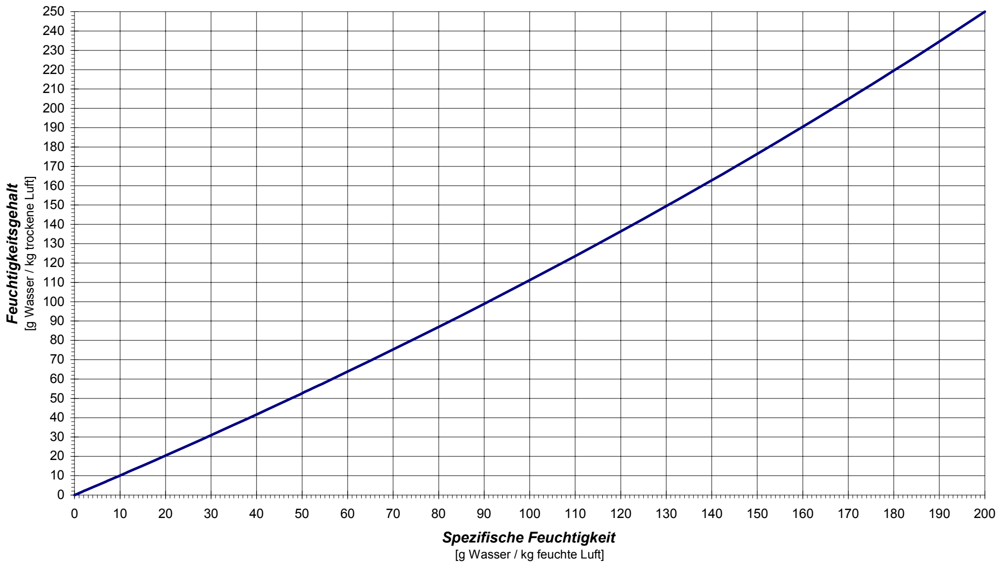


Abbildung 2-15 *Vergleich von Feuchtigkeitsgehalt und spezifischer Feuchtigkeit*

Um eine Beziehung zwischen Wasserdampfpartialdruck und Feuchtigkeitsgehalt herzustellen, wird auf die Komponenten Wasserdampf und Reinluft das allgemeine Gasgesetz angewandt:

$$pV = nRT \tag{2.20}$$

p *Druck [Pa]*
V *Volumen [m³]*
n *Stoffmenge [mol]*
R *Gaskonstante [J·mol^{-1}·K^{-1}]*
T *Absolute Temperatur [K]*

Für Wasserdampf:

$$p_W \cdot V = n_W \cdot R \cdot T \tag{2.21}$$

Für Reinluft:

$$p_{TL} \cdot V = n_{TL} \cdot R \cdot T \tag{2.22}$$

Mit der Definition der Molmasse gemäß

$$M = \frac{m}{n} \tag{2.23}$$

m *Masse [g]*
M *Molare Masse [g/mol]*

folgt damit für die beiden Gleichungen 2.21 und 2.22:

$$p_W \cdot V = \frac{m_W}{M_W} \cdot R \cdot T$$

$$p_{TL} \cdot V = \frac{m_{TL}}{M_{TL}} \cdot R \cdot T$$

Die spezifische Gaskonstante eines beliebigen Gases sowie von Gasgemischen wird berechnet gemäß:

$$R_i = \frac{R}{M_i} \tag{2.24}$$

Es gilt folglich:

$$p_W \cdot V = m_W \cdot R_W \cdot T \quad \Leftrightarrow \quad m_W = \frac{p_W \cdot V}{R_W \cdot T}$$

$$p_{TL} \cdot V = m_{TL} \cdot R_{TL} \cdot T \quad \Leftrightarrow \quad m_{TL} = \frac{p_{TL} \cdot V}{R_{TL} \cdot T}$$

Mit der Defintion des Feuchtigkeitsgehalts χ gemäß Gleichung 2.17 folgt damit:

$$\chi = \frac{m_W}{m_{TL}} = \frac{\frac{p_W \cdot V}{R_W \cdot T}}{\frac{p_{TL} \cdot V}{R_{TL} \cdot T}} = \frac{p_W \cdot R_{TL}}{R_W \cdot p_{TL}}$$

Der Partialdruck der Reinluft kann mit Gleichung 2.13 substituiert werden:

$$\chi = \frac{R_{TL}}{R_W} \cdot \frac{p_W}{p - p_W}$$

Daraus resultiert:

$$\chi = \frac{M_W}{M_{TL}} \cdot \frac{p_W}{p - p_W} \tag{2.25}$$

M_W *Molare Masse des Wassers 18,016 g/mol*
M_{TL} *Molare Masse trockener Luft 28,964 g/mol*

Einsetzen dieser Zahlenwerte führt zu

$$\chi = 0{,}6220135 \cdot \frac{p_W}{p - p_W}$$

Da der Feuchtegehalt χ gemäß Gleichung 2.17 in g/kg definiert ist, muss dieser Term noch mit dem Faktor 1000 multipliziert werden. Es gilt damit allgemein:

$$\chi = 622 \cdot \frac{p_W}{p - p_W} \qquad (2.26)$$

Für die Umrechnung von relativer Feuchte in den Feuchtegehalt gilt nach Einsetzen von Gleichung 2.14 analog:

$$\chi = 622 \cdot \frac{\varphi \cdot p_D}{p - \varphi \cdot p_D} \qquad (2.27)$$

Der maximale Feuchtigkeitsgehalt bei einer bestimmten Temperatur wird erreicht, wenn der Wasserdampfpartialdruck die Größe des Sättigungs-dampfdruckes annimmt:

$$\chi_{\max} = 622 \cdot \frac{p_D}{p - p_D} \qquad (2.28)$$

χ_{max} *Maximaler Feuchtigkeitsgehalt [g/kg]*

Aus den bisherigen Betrachtungen folgt, dass der Zustand feuchter Luft vollkommen beschrieben ist, wenn neben dem Luftdruck p und der Temperatur T eine der Zustandsgrößen f, φ, p_w oder χ bekannt ist.

2.9.2 Einfluß des Gesamtdrucks auf die Feuchtigkeitsbestimmung in Gasphasen

Aus dem allgemeinen Gasgesetz gemäß Gleichung 2.20 in Verbindung mit Gleichung 2.13 kann leicht aufgezeigt werden, dass die thermodynamische Zustandsgröße Feuchtigkeitsgehalt χ vom Gesamtdruck p abhängig ist, da die als Bezug benutzte Masse des Reinluftanteils von p beeinflusst wird:

$$m_L = \frac{p_L \cdot V}{R_L \cdot T} \qquad \text{und} \qquad p_L = p - p_W$$

und damit

$$m_L = \frac{V}{R_L \cdot T} \cdot (p - p_W)$$

Die Konsequenz dieses Zusammenhangs verdeutlicht Gleichung 2.28, die den Zusammenhang zwischen maximalem Feuchtigkeitsgehalt der Luft und atmosphärischem Druck beschreibt:

$$\chi_{\max} = 622 \cdot \frac{p_D}{p - p_D}$$

Da der Sättigungsdampfdruck p_D nur von der Temperatur determiniert wird, aber vom Gesamtdruck p unabhängig ist, gilt: *Je niedriger der Umgebungs-*

druck p, desto mehr Wasser kann die Luft aufnehmen. Da die meisten Feuchtesensortypen als Messgröße die relative Luftfeuchtigkeit verwenden, wird im folgenden ein Zusammenhang zwischen φ und p hergeleitet. Auflösen von (2.27)

$$\chi = 622 \cdot \frac{\varphi \cdot p_D}{p - \varphi \cdot p_D}$$

nach der relativen Luftfeuchtigkeit φ führt damit zu:

$$\chi \cdot (p - \varphi \cdot p_D) = 622 \cdot \varphi \cdot p_D$$

$$\chi \cdot p = (622 \cdot p_D + \chi \cdot p_D) \cdot \varphi$$

$$\varphi = \frac{\chi}{(622 + \chi) \cdot p_D} \cdot p \qquad (2.29)$$

Aus dieser Gleichung kann unmittelbar entnommen werden, dass die relative Luftfeuchtigkeit φ dem Gesamtdruck p direkt proportional wird, wenn Luft konstanten Feuchtigkeitsgehalts bei gleicher Temperatur expandiert bzw. komprimiert wird.

Anhand eines einfachen Beispiels soll dieser Sachverhalt illustiert werden. In einem Kolben, an dessen Wandung ein Feuchtigkeitssensor fixiert ist, befinde sich feuchte Luft folgender Zusammensetzung:

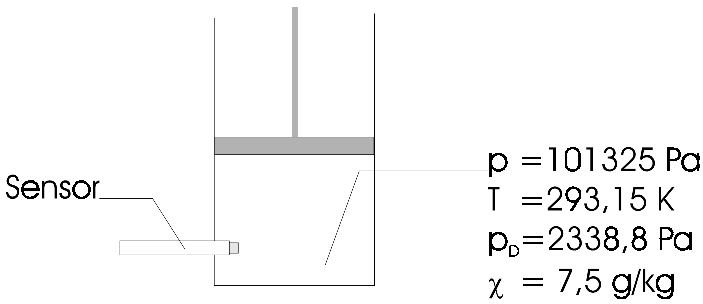


Abbildung 2-16 *Kolben in Ausgangsposition*

Die relative Luftfeuchtigkeit wird gemäß Gleichung 2.29 berechnet zu:

$$\varphi = \frac{\chi}{(622 + \chi) \cdot p_D} \cdot p = \frac{7{,}5}{(622 + 7{,}5) \cdot 2338{,}8\,Pa} \cdot 101325\,Pa = 51{,}6\,\%$$

Für den Wasserdampfpartialdruck gilt gemäß Gleichnung 2.14:

$$p_W = \varphi \cdot p_D = 0{,}51 \cdot 2338{,}8\,Pa = 1207{,}2\,Pa$$

Der Feuchtigkeitssensor wird mit diesem Wert kalibriert.

Nun wird der Druck im Kolben auf die Hälfte reduziert. Die Zusammensetzung der Luft ändert sich nicht; durch thermisches Äquilibrieren bleibt die Temperatur konstant.

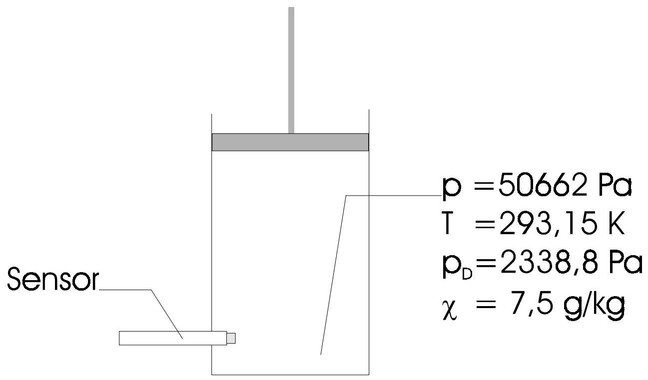


Abbildung 2-17 *Verminderter Druck im Kolben*

Die relative Luftfeuchtigkeit wird wiederum gemäß Gleichung 2.29, der Wasserdampfpartialdruck mit Gleichung 2.14 berechnet:

$$\varphi = \frac{7{,}5}{(622+7{,}5)\cdot 2338{,}8\,Pa} \cdot 50662{,}5\,Pa = 25{,}8\,\%$$

$$p_W = 0{,}258 \cdot 2338{,}8\,Pa = 603{,}6\,Pa$$

Da das Messprinzip des Sensors in der Erfassung des Wasserdampfpartialdrucks liegt, zeigt die Messwerterfassung dementsprechend den korrekten Wert von 25,8 % relativer Luftfeuchtigkeit an.

In der Messpraxis der Hygrometrie werden relative Luftfeuchtigkeiten gemessen und daraus die Feuchtigkeitsgehalte berechnet. Die folgende Abbildung zeigt die Spannweite der Feuchtigkeitsgehaltswerte, die aus der Umrechnung der fiktiven Messwerte φ = 50 % und T = 303,15 K resultieren

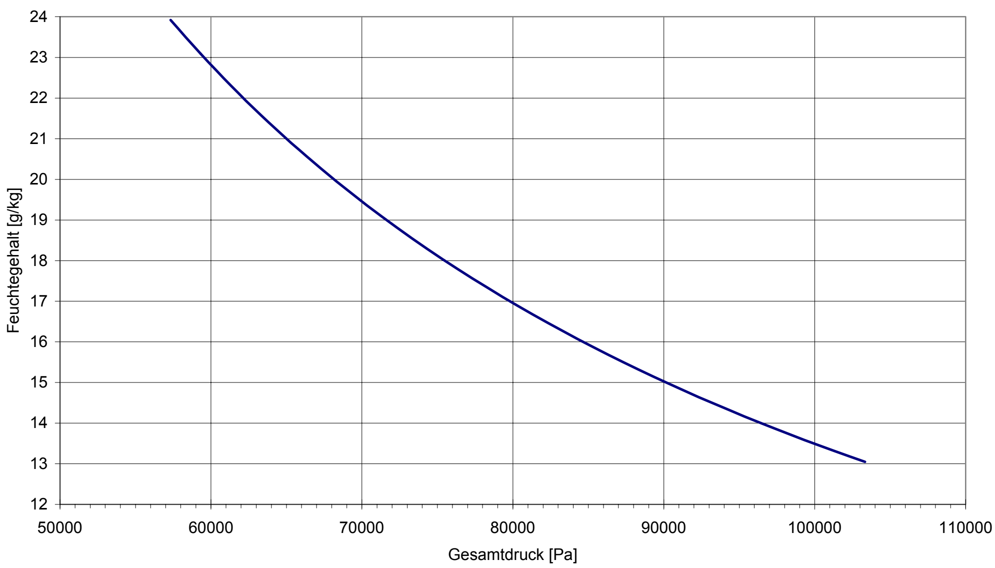


Abbildung 2-18 *Wasseraufnahmevermögen der Luft in Abhängigkeit vom Gesamtdruck am Beispiel 50 % relatier Feuchte und einer Temperatur von 303,15 K*

Die Bedeutung des Zusammenhangs zwischen Luftfeuchtigkeit und Gesamtdruck für die vorliegende Problemstellung besteht darin, dass die Abluft aufgrund des Saugmechanismus des Wirbelschichtgranulierers einen Unterdruck gegenüber den Raumbedingungen aufweist und damit deutlich mehr Wasser aufnehmen kann. Es finden sich jedoch in der Literatur keine Hinweise auf Durchführung entsprechender statischer Druckmessungen an WSG-Anlagen.

2.9.3 Taupunkt-Hygrometer

Wird ungesättigte feuchte Luft abgekühlt, so kommt es bei Unterschreiten einer bestimmten Temperatur zur Kondensation des Wassers. Aufgrund des Taubeschlages wird diese Temperatur als **Taupunkttemperatur** bezeichnet. Sie ist ein eindeutiges Maß für den Wassergehalt der Luft. Bei der einfachsten experimentellen Anordnung wird ein blankpolierter Metallspiegel auf der Rückseite durch Kühlflüssigkeit langsam abgekühlt und dabei die Temperatur mittels Thermoelement bestimmt. Der Taupunkt wird für den Betrachter durch Niederschlag feiner Wassertröpfchen sichtbar. Diese Methode erlaubt sehr präzise Wassergehaltsbestimmungen. Heutzutage sind Taupunktsmessungen automatisierbar. Durch photoelektrisches Scannen eines Taupunktspiegels, welcher thermoelektrisch so geregelt wird, dass ständig ein sehr geringer Taubeschlag existiert, ist sogar eine kontinuierliche Messung möglich. Taupunkt-Hygrometer bieten folgende Vorteile:

- *Sehr hohe Genauigkeit der Taupunktbestimmung bis 0,01 °C*
- *Zeitkonstante der Messung ca. 1 Sekunde*
- *Nahezu unempfindlich gegenüber Lösungsmitteln im Messgas*

2.9.4 Psychrometer

Das Messprinzip eines Psychrometers besteht darin, dass ein wasserbenetzter Körper im Luftzug abgekühlt wird. Der Messkopf eines Thermometers ist mit einem Baumwoll-Gewebe umhüllt, welches permanent mit destilliertem Wasser feucht gehalten wird. Vorbeiströmende ungesättigte Luft entzieht dem Gewebe Feuchtigkeit und führt durch die Verdunstungskälte zu einer Abkühlung des Thermometers („*Feuchtkugeltemperatur*“[88]). Der Temperaturunterschied zu einem „trockenen“ Referenzthermometer wird als **psychrometrische Differenz** bezeichnet und ist um so größer, je trockener das Fluid ist. Bei wasserdampfgesättigter Luft zeigen beide Thermometer

Abbildung 2-19 *Assmann Aspirationspsychrometer*

die gleiche Temperatur an. Voraussetzung für eine psychrometrische Bestimmung ist eine Strömungsgeschwindigkeit der Luft von mindestens 2,5 m/s. Die Genauigkeit einer Psychrometermessung beträgt ca. 3 %[89]. Mit abnehmender Temperatur nimmt die Genauigkeit ab, da die Psychrometerdifferenz kleiner wird. Die Halbwertszeit wird bei Verwendung von Thermoelementen mit 0,2 Sekunden angegeben. Beim Einsatz von Psychrometern ist zu bedenken, dass sie durch das verdunstende Wasser die Luftfeuchtigkeit beeinflussen. Am befeuchteten Docht kann es zu Mikroorganismenwachstum kommen.

2.9.5 Lithiumchlorid-Hygrometer

Lithiumchlorid (LiCl) zerfließt an feuchter Luft, sobald deren relative Feuchtigkeit einen Wert von 11,8 % bei 22 °C überschreitet. Die entstehende Elektrolytlösung leitet den elektrischen Strom im Gegensatz zum trockenen Salz sehr gut. Die technische Realisierung dieses Messprinzips besteht darin, ein Thermometer mit Glasfasergewebe zu umhüllen, welches mit einer LiCl-Lösung getränkt ist. Das Gewebe seinerseits ist mit einer Silber- oder Platinelektrode umwickelt, an die eine Wechselspannung angelegt ist. Ein Teil des Stromflusses erfolgt über die LiCl-Lösung, die sich dadurch erwärmt und verstärkt Wasser verdunsten läßt. Ab dem Punkt, an dem die LiCl-Lösung auskristallisiert, steigt der Widerstand des getränkten Gewebes, der Stromfluß und die Aufheizung reduzieren sich. Jetzt nimmt das Gewebe wieder Feuchtigkeit aus der Umgebungsluft auf. Durch diesen Regelkreis stellt sich eine bestimmte Umwandlungstemperatur am Thermometer ein, die nahezu linear mit dem Taupunkt der Umgebungsluft korrelliert.

2.9.6 Kapazitive Feuchtesensoren

Das Messprinzip dieser Feuchtesensoren beruht auf der Änderung der Kapazität eines mit einem hygroskopischen Dielektrikum versehenen Plattenkondensators in Abhängigkeit von der Feuchtigkeit der Umgebungsluft. Als Beispiel für die technische Realisierung dieses Sensorkonzepts sei die Bauweise der kapazitiven Feuchtesensoren der Firma HYGROCONTROL GmbH, Hanau näher erläutert[90]. Auf einem Glas- oder Keramikträger wird durch Aufdampfen einer Metallschicht die untere Kondensatorplatte gebildet. Hierauf wird in Dünnschichttechnik ein Film eines hygroskopischen Polymers aufgetragen; dieses bildet das Dielektrikum des Plattenkondensators. Durch Aufdampfen eines dünnen, wasserdampfdurchlässigen Goldfilms wird die obere Kondensatorplatte gebildet. Wenn bei hoher Luftfeuchtigkeit Wassermoleküle mit ihrer hohen Dielektrizitätskonstante in das Polymer hineindiffundieren, so kann bei gleicher Spannung mehr elektrische Ladung gespeichert werden. Die hieraus resultierende Zunahme der Kapazität des Kondensators wird mit hochfrequenten Wechselströmen gemessen.

Kapazitive Feuchtesensoren bieten eine Genauigkeit von bis zu ±1 % relativer Feuchte. Die Langzeitstabilität wird heutzutage mit ± 1 % rF in fünf Jahren

angegeben. Dieser Sensortyp ist unempfindlich gegen Betauung. Für die pharmazeutische Praxis ist bedeutsam, dass eine Empfindlichkeit gegenüber Stäuben immer gegeben ist; dem kann in gewissen Grenzen mit Fühlerkappen aus Sintermaterial, Teflon oder PE begegnet werden. Derartige Schutzkappen können zu stark verlängerten Ansprechzeiten führen. Aufgrund des Messprinzips wird das Messergebnis durch elektromagnetische Felder stark beeinflusst. Um unmittelbar in einer Wirbelschicht, die sehr häufig stark elektrostatisch aufgeladen ist, dennoch Messungen durchführen zu können, muss der gesamte Sensor in einen Faradayischen Käfig integriert werden[91]. Enthält das Messgas Lösungsmittel, so ist Vorsicht geboten, da zum einen das Messergebnis verfälscht wird, zum anderen die empfindlichen Polymerschichten zerstört werden[92]. Kapazitive Feuchtesensoren können sehr klein gebaut werden. Die Kapazitätsdifferenz dieser Sensoren ist jedoch vergleichsweise gering mit der Kapazität einiger weniger Meter Zuleitungskabel. Aus diesem Grund muss die elektronische Auswerteeinheit relativ dicht am Sensor installiert sein. Dieser Sensortyp wird überwiegend mit einem integrierten Temperatursensor gefertigt. Kapazitive Feuchtesensoren sind damit in der Lage, in einem Temperaturbereich von – 50 °C bis + 120 °C relative Feuchten zwischen 0 % und 100 % zu messen.

2.9.7 Resistive Feuchtesensoren

Resistive Feuchtesensoren bestehen aus einer dünnen Schicht eines hygroskopischen Polymers, auf das zwei Elektroden fixiert sind[*]. Die Messgröße ist der elektrische Widerstand, der sich mit dem Wassergehalt des Polymers ändert. Um elektrolytische Zersetzung zu verhindern, erfolgt die Messung mit Wechselstrom. Resistive Feuchtesensoren haben in letzter Zeit an Bedeutung verloren.

2.9.8 Spektroskopische Verfahren

Die spezifische Absorption des Wassers im IR-Bereich bei 1,87 µm und 2,66 µm sowie im Mikrowellenbereich bei einer Frequenz von 22,235 GHz lässt sich zur quantitativen Bestimmung des Wassergehaltes heranziehen[93]. Stäube müssen zum Schutz der optischen Bauteile aus dem Messgas entfernt werden.

2.9.9 Akustische Feuchtesensoren

Die Schallgeschwindigkeit c_{is} in einer Gasmischung aus n Komponenten K_i (i=1..n) ist eine Funktion der Massengehalte der Komponenten

[*] *Die ersten Sensoren bestanden aus einer im direkten Kontakt mit der Umgebungsluft stehenden hygroskopischen Elektrolytlösung; sie waren sehr empfindlich, insbesondere gegenüber Spritzwasser und Tau*

$$c_{is}\left(\chi_i, M_i, C_{pi}, T\right) = \sqrt{\frac{RT}{\sum_{i=1}^{n} \chi_i M_i} \cdot \frac{\sum_{i=1} \chi_i C_{pi}}{\sum_{i=1}^{n} \left(\chi_i C_{pi} - R\right)}} \quad (2.30)$$

c_{is} *Schallgeschwindigkeit [m/s]*
C_p *Spezifische isobare Wärmekapazität eines Gases [kJ/(kg·°C)]*
M_i *Molare Masse [g/mol]*
R *Universelle Gaskonstante 8,314 J · K^{-1} mol^{-1}*
T *Absolute Temperatur [K]*

In jüngster Zeit ist ein Feuchtesensor entwickelt worden, dessen Messprinzip auf der Änderung der Schallgeschwindigkeit der Luft in Abhängigkeit von ihrem Feuchtegehalt basiert[94, 95, 96]. Der grundlegende Vorteil eines solchen Systems besteht darin, dass eine physikalische Größe gemessen wird, die unmittelbar vom Feuchtegehalt der Luft determiniert wird. Im Gegensatz dazu werden bei anderen Messprinzipien stets die Änderungen der Eigenschaften eines weiteren Mediums (wie z.B. das hygroskopische Dielektrikum) als Maß für den Feuchtegehalt verwendet.
Akustische Feuchtesensoren bestehen aus einer von der Messluft durchströmten Zelle mit einem Ultraschallsender und einem Empfänger. Um den Temperatureinfluß zu kompensieren, wird jeweils eine Referenzmessung mit trockener Luft gleicher Temperatur durchgeführt. Dieser Sensortyp bietet folgende Vorteile:

- *Sehr robust*
- *Auch bei stark kontaminierter Luft einsetzbar*
- *Je höher die Temperatur, desto genauer die Messung*
- *Langzeitstabilität*
- *Weitgehend wartungsfrei*
- *Sehr kurze Ansprechzeit*

Dieser Sensortyp ist insbesondere für die Anwendung in der Papier-, Holz- und Lebensmittelindustrie konzipiert.

2.10 METHODEN ZUR VOLUMENSTROMBESTIMMUNG IN GASPHASEN

Die Bestimmung des momentan durch einen definierten Rohrquerschnitt fließenden Fluidvolumens wird als „Durchflussmessung“ bezeichnet. Der Quotient aus Volumen und Zeit trägt allgemein die Bezeichung **Volumenstrom**:

$$\dot{V} = \frac{V}{\Delta t} \quad (2.31)$$

$\dot{V}$ *Volumenstrom [m³/h]*
V *Fluid-Volumen [m³]*

Δt *Zeitintervall [h]*

Die exakte Bestimmung des Luftvolumendurchsatzes durch die WSG-Anlage ist die Grundvoraussetzung für eine zuverlässige Massenbilanzierung. Wie Modellrechnungen zeigen, führen schon Abweichungen der Volumenstrommesswerte von mehr als 10 % zu Fehlern in der Massenbilanzierung, die eine weitere Auswertung verhindern. Die Erfassung des Luftvolumenstroms ist somit *die* kritische Messgröße schlechthin.

Messtechnisch zugängig ist die Gasgeschwindigkeit u. Bei Kenntnis der Rohrquerschnittsfläche A_{Rohr} ergibt sich damit der entsprechende Volumenstrom zu:

$$\dot{V} = A_{Rohr} \cdot u \tag{2.32}$$

$\dot{V}$ *Volumenstrom [m³/h]*
A_{Rohr} *Rohrquerschnittsfläche [m²]*
u *Gasgeschwindigkeit [m/s]*

Zur Bestimmung von Gasgeschwindigkeiten existieren eine Reihe unterschiedlicher Messprinzipien[97]. Die Auswahl eines Verfahrens richtet sich nach dem Messbereich der jeweiligen Problemstellung. Gasgeschwindigkeitsmessgeräte werden allgemein als ***Anemometer*** bezeichnet.

2.10.1 Flügelradanemometer

Abbildung 2-20 *Flügelradanemometer*

Flügelradanemometer sehen äußerlich wie Axiallüfter aus. Das axiale Flügelrad muss so angeströmt werden, dass Geräteachse und Richtung der Geschwindigkeit zusammenfallen. Aufgrund von Reibungsverlusten wird stets eine Abweichung vom theoretisch linearen Zusammenhang zwischen Drehzahl und Geschwindigkeit beobachtet. Es muss folglich immer eine Kalibrierung durchgeführt werden. Die Drehzahl ist nahezu unabhängig von Dichte, Druck und Temperatur des Messmediums[98]. Der Messbereich von Flügelradanemometern liegt üblicherweise bei 0,2 bis 40 m/s. Für Messungen in engen Rohren sind Sensoren mit Flügelraddurchmessern von 10 mm verfügbar.

2.10.2 Prandtl-Rohr

Am halbkugelförmigen Kopf des hakenförmigen Staurohres wird an der Bohrung mit dem Durchmesser d ein Gesamtdruck der Strömung gemessen, der als Summe von statischem und dynamischem Druck resultiert.

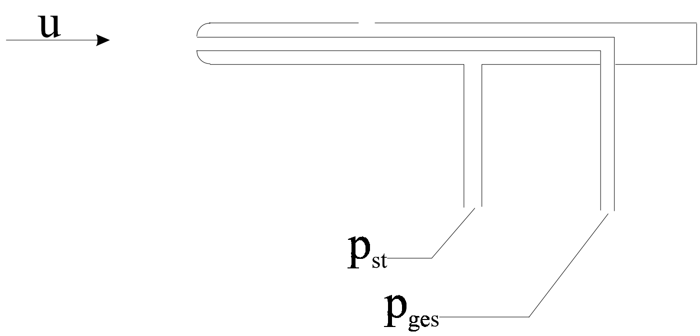


Abbildung 2-21 *Schema eines Prandtl-Rohres*

$$p_{ges} = p_{st} + p_{dyn} \tag{2.33}$$

p_{st} *Statischer Druck [Pa]*
p_{dyn} *Dynamischer Druck [Pa]*

Senkrecht zur Strömungsrichtung sind im Abstand von ca. $^2/_3$ des Durchmessers des Prandtl-Rohrs seitlich Schlitze im Staurohr angebracht, an denen lediglich der statische Druck p_{st} anliegt. Durch Verbinden der Anschlüsse beider Bohrungen an ein Differenzdruckmanometer kann der dynamische Druck p_{dyn} ermittelt werden. Für Geschwindigkeiten von Gasen und Dämpfen unterhalb von 100 m/s gilt dabei:

$$u = \sqrt{\frac{2 \cdot p_{dyn}}{\rho}} \tag{2.34}$$

u *Geschwindigkeit [m/s]*
p_{dyn} *Dynamischer Druck [Pa]*
ρ *Dichte der Luft [g/m³]*

Diese Berechnung lässt den Zähigkeitseinfluß unberücksichtigt, der sich bei niedrigen Reynoldszahlen bemerkbar macht. Die Strömungsrichtung sollte mit der Achse des Staurohres übereinstimmen; Abweichungen von bis zu ± 10° beeinflussen die Messgenauigkeit jedoch praktisch nicht.

2.10.3 Hitzdrahtanemometer

Hitzdrahtanemometer dienen zur Messung kleiner Geschwindigkeiten in der Aerodynamik. Das Messprinzip eines solchen Sensors beruht auf der Änderung des elektrischen Widerstandes eines Metalldrahts in Abhängigkeit von der Temperatur. Dabei gilt:

$$\Delta R = \alpha \cdot R_{kalt} \cdot \Delta T \tag{2.35}$$

ΔR *Widerstandsänderung [Ω]*
α *Materialspezifischer Temperaturbeiwert [1/K]*
R_{kalt} *Kaltwiderstand [Ω]*

ΔT *Temperaturänderung [K]*

Der Warmwiderstand ergibt sich damit zu

$$R_{warm} = R_{kalt} + \Delta R$$

R_{warm} *Warmwiderstand [Ω]*

Aus dem Zusammenfassen beider Gleichungen resultiert

$$R_{warm} = R_{kalt} \cdot (1 + \alpha \cdot \Delta T) \qquad (2.36)$$

Ein in einer Gasatmosphäre ruhender Widerstandsdraht, durch den elektrischer Strom fließt, produziert Wärme, die an die Umgebung abgegeben wird. Dieser Prozess wird als **freie Konvektion** bezeichnet. Im Gegensatz dazu wird eine sogenannte **erzwungene Konvektion** durch das Umströmen eines Drahtes von Luft realisiert. Es bildet sich eine Grenzschicht aus, die wie ein Wärmeisolator wirkt. Je höher die Strömungsgeschwindigkeit ist, desto dünner wird die Grenzschicht und um so besser kann der Wärmeübergang vom Draht an die Luft erfolgen. Dieser Sachverhalt wird quantitativ durch das **Kingsche Gesetz** beschrieben:

$$\dot{Q} = L \cdot \Delta T \cdot \left(\lambda + \sqrt{2\pi \cdot \lambda \cdot C_p \cdot \rho \cdot d_{HD} \cdot u}\right) \qquad (2.37)$$

$\dot{Q}$ *Abgeführter Wärmestrom [W]*
L *Länge des Hitzdrahtes [m]*
ΔT *Temperaturänderung [K]*
λ *Wärmeleitfähigkeit des Gases [W/mK]*
C_p *Spezifische isobare Wärmekapazität des Gases [kJ/(kg·°C)]*
ρ *Dichte des Gases [kg/m³]*
d_{HD} *Durchmesser des Hitzdrahtes [m]*
u *Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*

Es existieren zwei Messverfahren für den Betrieb eines Hitzdrahtanemometers:

a. Konstanter Strom:
   - Messung der Änderung des Widerstandes mittels Präzisionsbrückenschaltung
   - Abnehmende Empfindlichkeit bei zunehmender Geschwindigkeit
   - Nur für Geschwindigkeiten bis 20 m/s geeignet

b. Konstanter Widerstand:
   - Messung des elektrischen Stromes, der zur konstanten Temperierung des Widerstandsdrahtes benötigt wird
   - Für größere Geschwindigkeiten
   - Strömungsgeschwindigkeit steigt mit der vierten Potenz des Brückenstromes an

Um den Arbeitsbereich eines Hitzdrahtanemometers ermitteln zu können, ist die Kenntnis der Strömungsverhältnisse um einen solchen Draht Voraussetzung. Die folgende Graphik zeigt den funktionellen Zusammenhang von Reynoldszahl und c_w-Wert für einen umströmten Kreiszylinder.

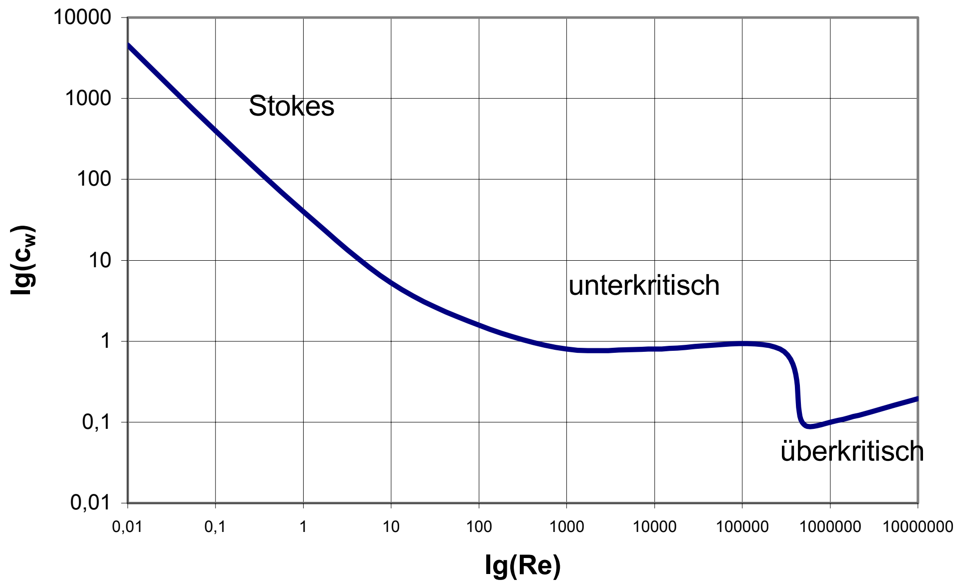
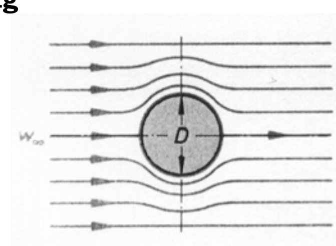


***Abbildung 2-22** c_w-Wert in Abhängigkeit von der Reynoldszahl für umströmte Kreiszylinder*

In Abhängigkeit von der Reynoldszahl können drei Zustände bei der Umströmung eines Kreiszylinders beobachtet werden:

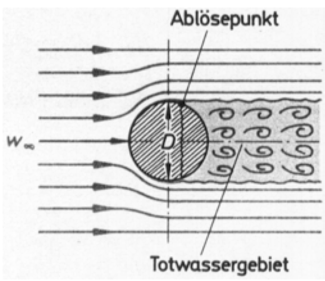
Schleichende Umströmung

- Re < 1000
- Stokes´sche Bedingungen
- Strömung schließt sich wieder hinter dem Kreiszylinder
- Keine Wirbelbildung
- Strömung übt hohe Widerstandskraft auf Kreiszylinder aus



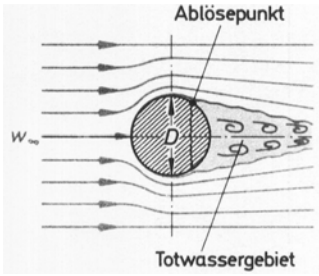
Unterkritische Bedingungen

- 1000 < Re < 4 • 10^5
- Laminare Grenzschicht
- Ablösepunkt der Grenzschicht etwa am größten Durchmesser
- Großes, wirbelbehaftetes Totwassergebiet im Strömungsschatten
- Hinter dem Kreiszylinder herrscht Unterdruck
- Strömung übt hohe Widerstandskraft auf Kreiszylinder aus



Überkritische Bedingungen

- $Re > 4 \cdot 10^5$
- Turbulente Grenzschicht
- Ablösepunkt hinter Meridiankreis
- Wesentlich kleineres Totwassergebiet
- Hinter dem Kreiszylinder herrscht geringer Überdruck
- Widerstandskraft geringer als bei unterkritischer Umströmung



Das Kingsche Gesetz besitzt nur für Stokes´sche Strömungsverhältnisse Gültigkeit.

Während unter erzwungener Konvektion ein Wärmeübergang infolge vorgegebener Strömung eines Fluids verstanden wird, meint freie Konvektion eine Wärmeabgabe in ruhender Atmosphäre, aus der eine Strömung resultiert (z.B. durch Aufsteigen warmer Gasblasen). Die untere Grenze des Arbeitsbereichs eines Hitzdrahtanemometers wird durch den Übergang von erzwungener zu freier Konvektion bestimmt. Dieser Wechsel zwischen beiden Konvektionsarten wird nach einer Konvention erreicht, wenn das Produkt von Reynolds- und Prandtl-Zahl den Wert 0,08 erreicht. Die nach dem deutschen Physiker Ludwig PRANDTL (1875 – 1953) benannte dimensionslosen Kenngröße Pr beschreibt das Verhältnis der Viskosität eines Fluids zu seiner Temperaturleitfähigkeit[99]:

$$\mathrm{Pr} \equiv \frac{\eta \cdot C_p}{\lambda} \tag{2.38}$$

Pr *Prandtl-Zahl [-]*
η *Dynamische Viskosität [Pa ·s]*
C_p *Spezifische isobare Wärmekapazität des Gases [kJ/(kg·K)]*
λ *Wärmeleitfähigkeit des Gases [W/mK]*

Für Luft bei 20 °C ergibt sich damit:

$$\mathrm{Pr}_{Luft} = \frac{15 \cdot 10^{-6} Pa \cdot s \cdot 1010 \dfrac{J}{kg \cdot K}}{0{,}02 \dfrac{J}{m \cdot K \cdot s}}$$

$$\mathrm{Pr}_{Luft} = 0{,}7575$$

Die entsprechende minimale Strömungsgeschwindigkeit für den Beginn erzwungener Konvektion eines Hitzdrahtes in Luft lässt sich damit berechnen gemäß

$$\mathrm{Re} \cdot \mathrm{Pr} = 0{,}08$$

$$\mathrm{Re} = \frac{u \cdot d}{\nu} = \frac{0{,}08}{\mathrm{Pr}}$$

$$u = \frac{\nu \cdot 0{,}08}{\mathrm{Pr} \cdot d} \tag{2.39}$$

Diese Strömungsgeschwindigkeit begrenzt den Arbeitsbereich eines Hitzdrahtanemometers nach unten. Die obere Grenze wird durch die maximale schleichenden Umströmung und damit dem linearen Bereich der Funktion Widerstandsbeiwert c_w in Abhängigkeit der Reynoldszahl festgesetzt. In der Praxis können Messungen bis zu Reynoldszahlen von 10 mit Hitzdrahtanemometern durchgeführt werden.

2.11 AN WSG-ANLAGEN ETABLIERTE ONLINE-MESSVERFAHREN

2.11.1 Problemstellung und Anforderungen an Sensoren

In den letzten Jahren war man bemüht, ein tieferes Verständnis der Prozesse in pharmazeutischen Produktionsanlagen zu erhalten, um damit diese Arbeitsabläufe automatisieren zu können. Letztendliches Ziel ist hierbei die Verbesserung der Qualität der Arzneimittel. Voraussetzung für die Steuerung eines WSG-Prozesses ist die exakte Kenntnis der aktuellen Betriebsparameter der Anlage. Aus diesem Grund werden WSG-Anlagen mit unterschiedlichster Sensorik ausgestattet. Mit dem Einbau eines Messfühlers allein ist es nicht getan. Die Arbeitsbedingungen in der pharmazeutischen Verfahrenstechnik verlangen einen Schutz des Sensorelements. Aus diesem Grund werden **Messumformer** eingesetzt, welche den eigentlichen Sensor als wichtigstes Element enthalten, aber auch eine Signalverarbeitung zu einem genormten Ausgangssignal (z.B. 4 .. 20 mA) durchführen. An Messumformer für den Einsatz in WSG-Anlagen sind allgemein folgende Anforderungen zu stellen[100]:

- Ein in weiten Grenzen einstellbarer Messbereich
- Gute Reproduzierbarkeit und Langzeitstabilität
- Hohe Ansprechgeschwindigkeit
- Hohes Auflösungsvermögen der Signalverarbeitung
- Funktionalität im Temperaturbereich +10 bis +100 °C
- Funktionalität bis hin zu einer Luftfeuchtigkeit von 100 %
- Stabilität gegen Druckschwankungen
- Beständigkeit gegen elektromagnetische Felder
- Korrosionsschutz
- Kompakte Bauweise
- Schutz vor mechanischer Belastung
- Geringer Instandhaltungsaufwand und hohe Lebensdauer

Für den speziellen Fall der Instrumentierung einer WSG-Anlage sind im allgemeinen folgende Probleme zu erwarten[42]:

⇒ Nach Abstellen der Saugventilatoren kann gegebenenfalls heiße Luft in Richtung Luftzuführung strömen und damit dort eingebaute Messfühler stören

⇒ Die Abluftbestimmung ist durch schnelle Temperaturschwankungen (infolge Abklopfen der Filter bei geschlossener Abluftklappe) erschwert. KOPP[42] schlägt daher vor, dieses Problem durch Einbau eines geheizten Bypasses mit eigenem Staubfilter zu lösen

⇒ Eine hohe Staubbelastung in der Abluft dürfte zu Messungenauigkeiten führen

Im folgenden wird kurz aufgezeigt, welche Messwerterfassungen bisher an WSG-Anlagen realisiert worden sind.

2.11.2 Frischluft-, Zuluft-, Produkt- und Ablufttemperatur

Temperaturmessungen in Anlagen erfolgen heutzutage üblicherweise mit Widerstandsthermometern[101]. Die Abhängigkeit des Widerstandes eines solchen Systems von der Temperatur ist annähernd linear:

$$T = \frac{1}{\alpha \cdot R_0} \cdot \left(R_T - R_0\right) \qquad (2.40)$$

T	*Temperatur [K]*
α	*Materialspezifischer Temperaturbeiwert [K^{-1}]*
R_0	*Widerstand bei 0 °C [Ω]*
R_T	*Widerstand bei der Temperatur T [Ω]*

Widerstandsthermometer weisen allgemein eine ausgezeichnete Langzeitstabilität auf. Die eigentliche Messzone eines Widerstandsthermometers umfasst nur die Spitze des jeweiligen Thermoelements. Trotz thermischer Isolation unterliegt jede Sensorhalterung einer Wärmeleitung. Eine Faustregel besagt, dass ein Thermofühlers mindestens mit der Länge des siebenfachen Durchmessers in das Messmedium eingetaucht sein muss, um diesen Störeffekt zu kompensieren[102]. Bei Widerstandsthermometern sind Messfehler durch Eigenerwärmung aufgrund des Messstromes theoretisch möglich, praktisch jedoch ohne große Bedeutung, da die entstandene Wärme durch vorbeiströmende Luft abtransportiert wird. Messungen in bewegter Luft führen zu verlängerten Reaktionszeiten gegenüber solchen an Feststoffen oder Flüssigkeiten, da Gase nur deutlich geringere Wärmeübertragungen erlauben. Der Einbau eines Produkttemperaturfühlers sollte daher möglichst dicht über dem Anströmboden erfolgen, da bei der hier höheren Produktdichte die Wärmeübertragung schneller erfolgt.
Die Temperaturverteilung in dem Produktbehälter einer WSG-Anlage ist von MÖRL untersucht und mathematisch beschrieben worden[103]. Durch zentrische Einführung einer vertikal justierbaren Messsonde in den Apparat können radiale und axiale Temperaturgradienten aufgenommen werden. Das entwickelte mathematische Modell beschreibt einen höhenabhängigen expo-

nentiellen Verlauf für die Feuchte des Fluidisierungsgases sowie einen umgekehrt proportionalen Verlauf der Lufttemperatur. Wie TROJOSKY feststellte, ist die Gastemperatur im Bereich der Wirbelschicht nahezu gleich der Ablufttemperatur[104]. Lediglich im Sprühbereich sowie unmittelbar über dem Anströmboden wurden hiervon deutlich abweichende Temperaturen gemessen. Kopp[42] fand heraus, dass der Wärmezustand eines WSG die Ablufttemperatur stark beeinflußt

2.11.3 Zu- und Abluftfeuchte

Der Feuchtegehalt des Trägergases in WSG Anlagen wird schon sehr lange bestimmt; die Leistungsfähigkeit der Sensoren beschränkte jedoch bisher die Reproduzierbarkeit[105]. Um in einer WSG-Anlage anwendbar zu sein, muss ein Sensor relative Luftfeuchtigkeiten von 0 bis 100 % in einem Temperaturbereich zwischen 15 und 95 °C messen können, was Feuchtegehalten zwischen 1 und 40 g/kg entspricht. Bei Messungen der Abluftfeuchte ist mit der Kontamination des Trägergases durch Staubpartikeln zu rechnen. Um die Sensoren von derartigen Verunreinigungen zu schützen, werden im allgemeinen Sinterfilter aufgesetzt, die jedoch zu einer zeitlichen Verzögerung des Messsignals führen (**Verschmierung**). Da hohe Luftfeuchtigkeiten zu Kondensationen am Sensor führen können, wird oftmals eine Bypass-Lösung angewendet, bei welcher ein Teil des Abluftvolumenstromes abgezweigt und durch eine separate Heizung soweit erwärmt wird, dass die Taupunkttemperatur deutlich überschritten wird[42].

Taupunktdetektoren finden aufgrund ihres hohen Preises nur selten Anwendung. Um 1990 fanden resistive Feuchtesensoren Anwendung, bei denen der Widerstand einer Elektrolytlösung gemessen wurde, die Feuchtigkeit mit dem Messmedium austauschte. Trotz Temperaturkompensation waren die Messwerte, auch wegen der starken zeitlichen Verzögerung des Messsignals, unbefriedigend. KOPP bewertete damals die Abluftfeuchtemessung als nicht erfolgversprechend[42]. Die weiteste Verbreitung, nicht zuletzt aufgrund ihrer niedrigen Beschaffungskosten, haben inzwischen kapazitive Feuchtesensoren erlangt[106].

2.11.4 Produktfeuchte

Da schon frühzeitig die Produktfeuchte als der Schlüsselparameter zur Steuerung des Granulatwachstums in einem WSG-Prozess identifiziert war, wurden viele Anstrengungen unternommen, diese Größe zu messen. Neben der stichprobenweisen Bestimmung mittels Feuchtewaagen bzw. Karl-Fischer-Titration wurden verschiedene Methoden zur Online-Messung entwickelt.

WATANO stellte 1996 einen IR-Feuchtigkeitssensor vor[107]. IR-Strahlung wird fast ausschließlich von an der Oberfläche der Partikeln angelagertem Wasser absorbiert. Diffusionsvorgänge innerhalb der Granulen führen daher zu deutlichen Störungen der Messergebnisse.

Von der Firma GLATT wird ein auf der Reflexion mikrowellenähnlicher Strahlung im Bereich um 0,5 GHz basierendes Messsystem unter der Bezeichnung „*OPM-Feuchtigkeitsmesser*“ vertrieben. Aufgrund des Messprinzips weist dieser Messumformer den systemimmanenten Nachteil der Notwendigkeit einer produktspezifischen Kalibrierung auf.

2.11.5 Volumenstrom

Die meisten WSG-Anlagen werden heutzutage mit Sensoren ausgestattet, die die Strömungsgeschwindigkeit des Fluids messen. Dabei finden Pitot-Staurohre häufig Anwendung. Es finden sich jedoch in der Literatur keinerlei Hinweise zu einer geeigneten Kalibrierung dieser Sensoren. Meist wird der Volumenstrom fälschlicherweise mittels der in der Mitte des Luft-führenden Rohres gemessenen Strömungsgeschwindigkeit und dessen Querschnittsfläche hochgerechnet[16]. Alternativ werden Messungen mit ungedämpften Flügelrad-Anemometern durchgeführt. Dabei wird hingenommen, dass aufgrund turbulenter Strömungsverhältnisse tendentiell zu hohe Luftdurchsatzwerte ermittelt werden[108].

2.11.6 Partikelgröße

Als derzeit einzige Online-Methode zur Bestimmung der Partikelgrößenverteilung im laufenden Granulationsbetrieb ist ein besonderes optisches Verfahren entwickelt worden[109]: Die von einer CCD-Kamera über Lichtleiter aufgenommenen Bilder des Schüttgutes im Granulationsbehälter werden von einer speziellen Bildverarbeitungssoftware ausgewertet. Es ist damit möglich, in Echtzeit sowohl Partikelgrößenverteilung als auch die Partikelform zu analysieren.

2.11.7 Ausbildung der Wirbelschicht

Um die Einstellung eines stabilen Wirbelbettes zu realisieren und quantifizieren zu können, sind verschiedene Messmethoden entwickelt worden.

<u>Differenzdruckbestimmungen</u>
MERKKU instrumentierte 1992 eine WSG-Anlage mit Differenzdrucksensoren, welche die Belegung des Anströmbodens sowie die Beladung der Produktrückhaltefilter analysieren[110].

<u>Röntgenstrahlung</u>
GILBERTSON untersuchte die Bildung von Wirbelschichten mit Hilfe von Röntgenstrahlung[10]. Diese Art von Sensorik bleibt aufgrund von Sicherheitsaspekten auf die Forschung an Modellen begrenzt.

<u>Optische Methoden</u>
Die einfachste Art, Informationen über die Ausbildung einer Wirbelschicht zu erhalten besteht in der Aufnahme von Photos oder Videos durch einen transparenten Einblick in das Ansatzgefäß. Durch Anwendung geeigneter Bildverarbeitungssysteme gelingt es, die Partikelgeschwindigkeit sowie deren Bewe-

gungsrichtung zu analysieren. Eine Zusammenstellung gängiger Messverfahren findet sich bei WERTHER[111].

2.11.8 Bestimmung der Größe der Sprühflüssigkeitstropfen

Da wie in Kapitel 2.7 dargestellt die Tröpfchengröße der Sprühflüssigkeit die Agglomerierkinetik eines WSG-Verfahrens beeinflußt, ist eine Bestimmung der Sprühtropfengröße notwendig. Der mittlere Durchmesser der Sprühtropfengröße wird durch folgende Faktoren beeinflusst[66]:

- Konstruktion der Sprühdüse
- Massenverhältnis von Sprühluft zu Sprühflüssigkeit
- Sprühluftdruck
- Oberflächenspannung der Sprühflüssigkeit
- Dichte der Sprühflüssigkeit
- Viskosität der Sprühflüssigkeit
- Dichte der Sprühluft

Bereits 1951 hatte MUGELE die Sprühtropfengrößenverteilung in Sprays beschrieben und dabei den größten stabilen Tropfendurchmesser als signifikaten Parameter ermittelt[112]. Ferner wurde aufgezeigt, dass konventionelle Verteilungsfunktionen wie die RRSB-Verteilung Sprühtropfenkollektive nicht hinreichend beschreiben. KIM leitete 1971 empirische Korrelationen zwischen Sprühdüsen-Betriebsparametern und resultierender Sprühtropfengröße ab[113]. Diese Berechnungen sind spezifisch für den jeweiligen Sprühdüsentyp. Die Untersuchungen wurden hier mit verflüssigtem Wachs durchgeführt, welches nach Passieren der Sprühdüse zu festen Partikeln erstarrte und somit einer Siebanalyse unterzogen werden konnte. SCHÆFER und WØRTS zeigten 1977 die Anwendbarkeit einer modifizierten Formel zur Berechnung des mittleren Sprühtropfendurchmessers auf. Diese Autoren gehen davon aus, dass allein die mittlere Sprühtropfengröße zur Charakterisierung der Tropfengrößenverteilung hinreichend ist. Die Bestimmung dieses Parameters wurde hier durch Auffangen der Sprühtropfen auf eine mit viskosem Öl benetzte Oberfläche und anschließende mikroskopische Analyse durchgeführt. Sehr komplexe Berechnungen der maximalen Sprühtropfengröße finden sich bei GRASSMANN[114]. Die genannten experimentellen Verfahren weisen alle den Nachteil auf, die Sprühtropfen nicht in situ zu analysieren. 1995 führte JUSLIN Messungen der Sprühtropfengröße mit der Laserstreulichtanalyse durch[115]. Hierdurch wurde es erstmals möglich, die Sprühtropfen unmittelbar nach Passieren der Sprühdüse zu charakterisieren. Es finden sich in der Literatur keine Hinweise zu einer on-line Bestimmung der Sprühtropfengrößenverteilung. Diese Messungen werden vor Beginn der Granulation mit der jeweiligen Sprühdüse außerhalb der WSG-Anlage durchgeführt.

2.12 STEUERUNGEN VON WSG-PROZESSEN

2.12.1 Konditionierung der Zuluft

Um die Reproduzierbarkeit von WSG-Prozessen zu verbessern, werden heutzutage ca. 80 % der neu geschaffenen großtechnischen WSG-Anlagen mit einer Konditionierungseinheit für die Zuluft ausgestattet; für Anlagen im Labormaßstab ist dies jedoch nicht vorgesehen[116]. Eine Entfeuchtung der Frischluft wird durch Abkühlen auf 6 °C realisiert: Mit Erreichen des Taupunktes kommt es zur Abscheidung von Wasser; die Luft wird hiermit auf eine absolute Feuchte von 8 g/kg eingestellt. Durch Abkühlen auf 1 °C werden Gehalte um 6 g/kg erzielt. Für Spezialanwendungen kann dieser Einheit ein Sorptionstrockner nachgeschaltet werden, welcher die Frischluft auf 2 bis 3 g/kg Wasser entfeuchtet. Das Prinzip dieser Luftentfeuchtung besteht darin, die feuchte Frischluft durch einen Rotor zu leiten, dessen wabenförmige Struktur eine außerordentlich große Oberfläche aufweist. Diese Fläche ist mit einem Sorptionsmittel beschichtet, das der durchgeführten Luft die Feuchtigkeit entzieht. Da das üblicherweise verwendete Silicagel bei niedrigen Temperaturen eine höhere Wasseraufnahmekapazität aufweist, sollte die zu trocknende Frischluft kälter als 50 °C sein. Das Trockenrad dreht sich mit ca. 8 Umdrehungen pro Stunde und durchläuft einen zweiten Sektor, in dem ein weiterer, erwärmter Luftstrom dem Rad die Feuchtigkeit wieder entzieht[117]. Da der Regenerationsluftstrom um etwa 100 °C über die Temperatur des zu trocknenden Gases aufgeheizt wird, hat ersterer eine deutlich höhere Wasseraufnahmekapazität. Aus diesem Grund genügt zur Regeneration ein Volumenstrom von nur einem Drittel des zu trocknenden Gasstromes. Mit dieser Entfeuchtungstechnik können Volumenströme bis zu 57.000 m³/h entfeuchtet werden[118].

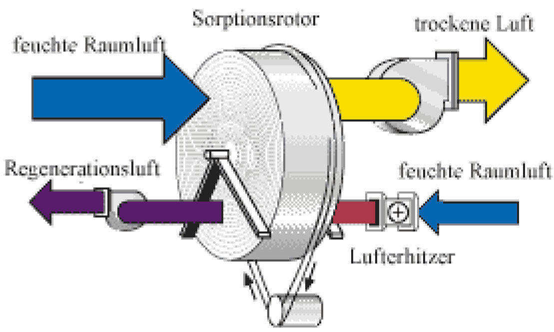


Abbildung 2-23 *Sorptionsrotor Firma MUNTERS*

Eine *Befeuchtung* der Frischluft ist bisher nur bei wenigen Pilotanlagen realisiert worden. Hierbei wird die Frischluft auf 30 °C aufgeheizt und gesättigter Wasserdampf eingeblasen. Durch Bypass-Bauweise der Befeuchtungseinheit ist die Möglichkeit gegeben, definierte Feuchtigkeitsgehalte der Zuluft zu realisieren. Die Anreicherung der Luft mit Wasser wird auch praktiziert, um elektrostatische Aufladungen zu minimieren.

2.12.2 Massenbilanzierungen

SCOTT stellte 1964 erstmals Überlegungen zu Massenbilanzierungen eines WSG Prozesses an[56]. Da die Untersuchungen an einem Versuchsmodell einer kontinuierlich arbeitenden Anlage durchgeführt wurden, sollten sowohl Wasser- als auch Feststoffmassenströme berücksichtigt werden. Gleichzeitig wurden Überlegungen zur Erstellung von Energiebilanzen durchgeführt. 1973 publizierte ORMÓS Denkansätze für die Wassermassenbilanzierung eines WSG-Prozesses[28]. SCHLÜNDER führte 1976 Messungen der Trocknungsgeschwindigkeiten technischer Substanzen in einer Modellanlage durch und stellte Berechnungen über die Massenbilanzierung des Trocknungsprozesses an[93]. 1992 wurden von CARIUS Untersuchungen zur Erstellung einer Massenbilanzierung eines WSG-Prozesses publiziert, die aber nie über das Stadium eines Rechenansatzes hinauskamen[105]. Im selben Jahr präsentierte MERKKU eine Untersuchung über eine Versuchsanlage mit sehr umfassender Instrumentierung, die als thermodynamisches System beschrieben wurde[x]. 1996 schlug WATANO ein Modell zur Bilanzierung der Wassermasse in einer Rotor-WSG-Anlage vor[119]. Der in die Anlage eingebrachte Wassermassenstrom wird als Summe der Massenströme der Sprühflüssigkeit und des mit der Frischluft eingebrachten Wassers berechnet. Der die Anlage verlassende Wassermassenstrom wird über Wärmebilanzen approximiert. Als Nachteil dieser Methode ist festzuhalten, dass die Abluftfeuchtigkeit nicht unmittelbar gemessen wird. Im Jahr 2000 gelang es HLINAK[120], den Trocknungsprozess in einem Wirbelschichttrockner über Wärme- und Wassermassenbilanzen zu quantifizieren. Bei dieser Arbeit wird insbesondere der Einfluß der Feuchtigkeit der Zuluft auf das mögliche Trocknungsergebnis untersucht. Es finden sich jedoch in der Literatur keinerlei Hinweise, einen gesamten Granulationsprozess zu bilanzieren.

2.12.3 Mathematische Modelle der Wirbelschichtgranulierung

In der Literatur gibt es zahlreiche mathematische Modelle zur Beschreibung von Wirbelschicht-Zuständen. Exemplarisch seien hier die Ausführungen von MOLERUS[121] und STIEß[122] genannt. WALDIE stellte 1987 ein Modell zum Wachstumsmechanismus von Granulen in batchweisen und kontinuierlichen Wirbelschichtgranulierern vor[123]. Die hiermit vorhergesagten Partikelgrößen waren jedoch stets kleiner als die tatsächlich erhaltenen. WATANO entwickelte 1996 ein Modell, welches die Vorhersage der zu erwartenden Granulat-Partikelgrößen für vorgegebene Mischungen von Lactose und Maisstärke bei unterschiedlichen Bedingungen einer Rotorwirbelschichtanlage erlaubt[124]. Eine Aufbaugranulation ist demzufolge gegeben, wenn die durch Flüssigkeitsbrücken zwischen zwei Partikeln bestehende Bindungskraft größer ist als die durch den Rotor bedingte Trennkraft. Die Ergebnisse der Modellrechnungen stimmen mit den gemessenen Werten gut überein. Es ist jedoch kei-

ne Übertragung dieses Modells auf andere WSG-Systeme beschrieben. MÖRL publizierte 1998 ein mathematisches Modell, mit welchem die Berechnung der Trocknungskinetik in WSG-Anlagen möglich wird[103]. Es wird aufgezeigt, dass die Trocknungsgeschwindigkeit nicht von der Menge der eingesprühten Flüssigkeit, jedoch von dem verwendeten Feststoff und seinem Partikeldurchmesser abhängt. Die Übertragung auf pharmazeutische Prozesse ist jedoch nur eingeschränkt möglich, da dieses Modell für Glasperlen entwickelt wurde, jedoch Absorptions- und Desorptionsvorgänge durch das Schüttgut außer acht lässt.

2.12.4 Fuzzy logic

1995 präsentierte WATANO die Steuerung des Feuchtegehalts eines Schüttgutes in einer Rotor-WSG-Anlage über einen linguistischen Algorithmus[125]. Als Eingangsgrößen für die Steuerung werden hierbei der aktuelle Feuchtegehalt sowie dessen zeitliche Änderung verwendet.

2.12.5 Neuronale Netze

Neuronale Netze stellen eine besondere Art von Simulationswerkzeugen dar; sie können als Netzwerke anpassungsfähiger Knoten betrachtet werden, die von einzelnen Aufgabenstellungen ausgehend „lernen". Die Entwicklung eines neuronalen Netzes vollzieht sich in vier Stufen:

1. Spezifikation der Netzwerkarchitektur: Input-Knoten, versteckte Ebenen, Output-Knoten
2. Normalisierung: Input und Output-Variablen werden auf Werte zwischen 0 und 1 normalisiert
3. Training-Stufe: das neuronale Netz „lernt" den Zusammenhang zwischen unabhängigen und abhängigen Variablen (bei kleiner Datenzahl)
4. Test-Stufe: unabhängige Variablen werden vorgegeben, die abhängigen Variablen durch das neuronale Netz ermittelt und schließlich deren Abweichung von den tatsächlichen Werten berechnet

Neuronale Netze sind insbesondere dann gut anwendbar, wenn der Zusammenhang zwischen Einflußgrößen und Ergebnissen nicht beschrieben ist. Ein weiterer Vorteil besteht in der Berücksichtigung verschiedener abhängiger und unabhängiger Variablen in einem Modell. Seit 1994 gibt es Anwendungen dieser Technik für die Simulation von WSG-Prozessen, wobei die Granulateigenschaften, nicht aber die Versuchsbedingungen simuliert werden[126]. Versuche, mittels Neuronaler Netze Eigenschaften der aus dem Granulat gepressten Tabletten vorherzusagen, blieben bisher erfolglos[127]. Nachteil dieser Arbeiten ist, dass das eigentliche Verständnis des Prozesses nicht gefragt ist, sondern vielmehr gleichsam mit einem Black-Box-Denken agiert wird.

2.12.6 Dimensionslose Darstellung der Zugabe von Granulierflüssigkeit

Für die Reproduzierbarkeit eines WSG-Prozesses sind insbesondere die Bedingungen der Zugabe der Sprühflüssigkeit relevant. Für die Feuchtagglomeration in Schnellmischern ist von IMANIDIS[128] eine dimensionslose Darstellung der notwendigen Granulierflüssigkeitsmasse entwickelt worden:

$$\Pi_{Sp,m} = \frac{m_{Sp} - m_{S\min}}{m_{S\max} - m_{S\min}} \qquad (2.41)$$

$\Pi_{Sp,m}$	*Dimensionslose Granulierflüssigkeitsmenge*
m_{Sp}	*Granulierflüssigkeitsvolumen aktuell [ml]*
m_{Smin}	*Granulierflüssigkeitsvolumen, welches von Primärpartikeln absorbiert wird, ohne dass es zur Bildung von Flüssigkeitsbrücken kommt [ml]*
m_{Smax}	*Granulierflüssigkeitsvolumen, bei welchem die Primärpartikeln mit Flüssigkeit gesättigt sind [ml]*

Es gilt dabei:

$$m_{Smin} < m_{Sp} < m_{Smax}$$

Die Werte für m_{Smin} und m_{Smax} sind substanz- und systemspezifisch.
Die Kinetik der Zugabe der Granulierflüssigkeit ist ebenfalls dimensionslos darstellbar:

$$\Pi_{Sp,t} = \frac{\dot{S} \cdot t}{m} \qquad (2.42)$$

$\Pi_{Sp,t}$	*Dimensionslose Zugabezeit der Granulierflüssigkeitsmenge*
$\dot{S}$	*Sprührate [g/min]*
t	*Zeit [min]*
m	*Masse Schüttgut [g]*

Die dimensionslose Darstellung der Bedingungen der Zugabe der Granulierflüssigkeit erlaubt den Vergleich des Agglomerierverhaltens verschiedener Substanzen und Granuliersysteme. Es finden sich in der Literatur jedoch bisher keine Hinweise für die Übertragung dieser dimensionslosen Ausdrücke auf WSG-Prozesse.

3 Arbeitshypothese

Wie aufgezeigt worden ist, haben WSG-Prozesse heute weite Verbreitung in der pharmazeutischen Industrie gefunden. Sehr häufig wird dabei die Granulation auf wässriger Basis durchgeführt. Die Feuchtigkeit der zum Aufbau des Wirbelbetts verwendeten Frischluft hat einen entscheidenend Einfluß auf den Verlauf und das Ergebnis des Prozesses[46]. Untersuchungen in Würzburg haben saisonale Schwankungen der Feuchtegehalte der Umgebungsluft von 1,5 bis 15 g Wasser pro kg trockener Luft ergeben. Es existieren in verschiedenen pharmazeutischen Betrieben Rezepturen, die bei Gewitterwetter aufgrund der hohen Luftfeuchtigkeit nicht produziert werden können[129]. Dass derartige Herstellungsprozesse keine für Zulassungsbehörden ausreichende Validierung erlauben, bedarf keiner weiteren Erläuterung.

Absicht dieser Arbeit ist es, eine Massenbilanzierung eines Granulationsprozesses bezüglich des eingesetzten Wassers durchzuführen, um damit die Voraussetzungen für die zielgerichtete Entwicklung von Granulationsprozessen sowie deren Simulation zu schaffen. Weitere Ziele bestehen in der Optimierung des Energieeinsatzes für derartige Prozesse sowie der Entwicklung produktunabhängiger Steuerungsmechanismen.

Die Arbeitshypothese der Massenbilanzierung basiert auf folgender Grundüberlegung: In einen Wirbelschichtgranulierer wird Wasser durch die Frischluft, die Pressluft sowie die Sprühflüssigkeit eingetragen. Der Wasseraustrag erfolgt allein durch die Abluft. Der gesamte Prozesszeitraum wird in konstante Zeitintervalle i der Dauer Δt aufgeteilt. Für den aktuellen Wassergehalt im Ansatzgefäß folgt somit:

$$m_{Wasser\,im\,Ansatz}(t) = m_{Start} + \sum_{i=1}^{i_t} m_{F,i} + \sum_{i=1}^{i_t} m_{p,i} + \sum_{i=1}^{i_t} m_{s,i} - \sum_{i=1}^{i_t} m_{A,i} \qquad (3.1)$$

$m_{Wasser\ im\ Ansatz}(t)$	*Masse Wasser im Ansatzbehälter zum Zeitpunkt t [g]*
m_{Start}	*Masse Wasser im Ausgangsprodukt [g]*
$m_{F,i}$	*Durch Frischluft im Zeitintervall i eingebrachte Masse Wasser [g]*
$m_{p,i}$	*Durch Pressluft im Zeitintervall i eingebrachte Masse Wasser [g]*
$m_{S,i}$	*Durch Sprühflüssigkeit im Zeitintervall i eingebrachte Masse Wasser [g]*
$m_{A,i}$	*Durch Abluft im Zeitintervall i ausgetragene Masse Wasser [g]*

Aus den bisherigen Ausführungen ist ersichtlich, dass eine derartige Massenbilanzierung eines Wirbelschichtgranulationsprozesses nur unter folgenden Voraussetzungen möglich ist:

- Dichtigkeit der gesamten Anlage (kein Ansaugen von Fehlluft)
- Basislinienstabilität der Feuchtesensoren
- Konstanter Feuchtigkeitsgehalt über den gesamten Rohrquerschnitt an der Einbaustelle eines Feuchtesensors
- Sehr schnelles Ansprechverhalten der Feuchtesensoren
- Exakte Messung des Volumenstromes
- Präzise Berechnung der Dichte der Luft, um auf Massenströme umrechnen zu können
- Kenntnis des Luftdruckes und der Lufttemperatur am Ort der Feuchtigkeitsmessung
- Verhinderung der Wasserkondensation im Bereich der Abluftfeuchtemessung (da nur verdampftes Wasser vom Sensor erfasst werden kann)

Die Überprüfung der Arbeitshypothese soll anhand nachstehender Versuchsplanung in vier Phasen erfolgen:

Tabelle 3-1 Versuchsdesign zur Entwicklung der Massenbilanzierung

Phase	Material im Ansatz	Sprühflüssigkeit	Zielsetzung
I	-	-	• Basislinienstabilität • Übereinstimmung von Zu- und Abluftfeuchte • Quantifizierung des „Rauschens“
II	-	Wasser	• Quantifizierung des Ansprechverhaltens der Feuchtesensoren • „Steady state“ -Wasserbilanz • Bestimmung der kritischen Sprührate
III	Feuchtes Schüttgut	-	• Quantifizierung Trocknungsprozess
IV	Schüttgut	Bindemittellösung	• Quantifizierung WSG-Prozess • Bestimmung von Arbeitsbereichen für Standardgranulate

4 Material und Standardmessmethoden

4.1 Materialien für die Granulation

Als Probenmaterial wurde eine Standardformulierung entwickelt, die folgende Anforderungen erfüllt:

- Toxikologisch unbedenklich
- Weit verbreitet in der pharmazeutischen Praxis
- Preiswert
- Verwendbar als Placebogranulat für Tablettierversuche (gute Verpressbarkeit sowie gute Zerfallseigenschaften)

Als Füllstoff wird Lactose-Monohydrat verwendet.

Tabelle 4-1 *Stoffdaten von GranuLac 200*[130]

GranuLac 200 Meggle	
Hersteller	Meggle GmbH, Wasserburg, Deutschland
Chemische Bezeichnung	α-Lactose-Monohydrat
Wassergehalt	5 % Kristallwasser (entfernbar ab 120 °C) 0,1 bis 0,2 % adsorptiv gebundene Wasser (entfernbar ab 80 °C)
Wahre Dichte	1540 g/l
Schüttdichte	53 g/l
Stampfdichte	770 g/l
Spezifische Oberfläche BET	0,9 m^2/g
D[v; 0,5]	21,64 µm
Löslichkeit	Ethanol: praktisch unlöslich Wasser: 1 in 3,14 bei 40 °C

Aus der Messung der Korngrößenverteilung geht hervor, dass neben Partikeln zwischen 150 und 200 µm ein hoher Feinanteil mit Durchmessern um 10 µm zugegen ist:

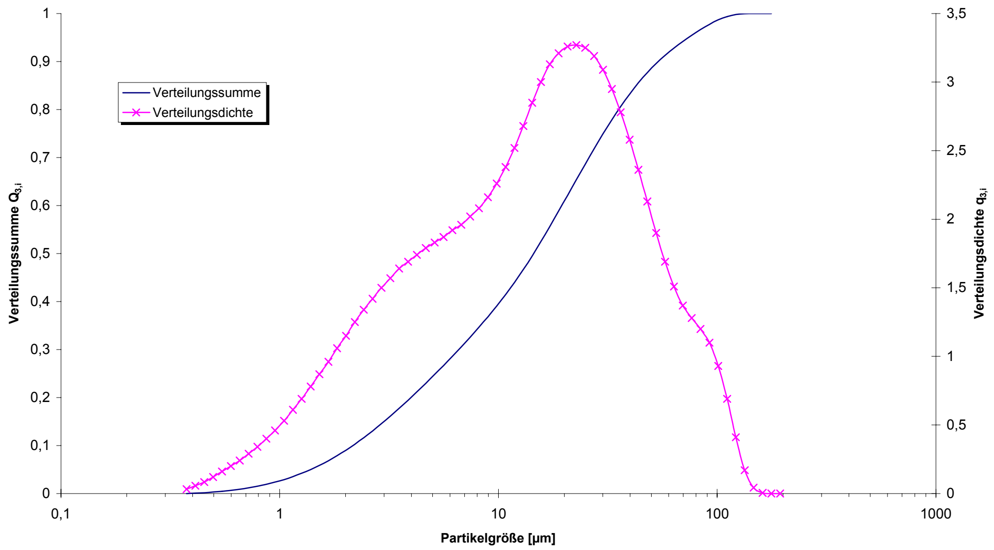


Abbildung 4-1 *Partikelgrößenverteilung von GranuLac® 200 bestimmt mit Coulter® LS 230 in Isopropanol*

Die breite Korngrößenverteilung des GranuLac 200 ist in den REM-Aufnahmen deutlich zu erkennen

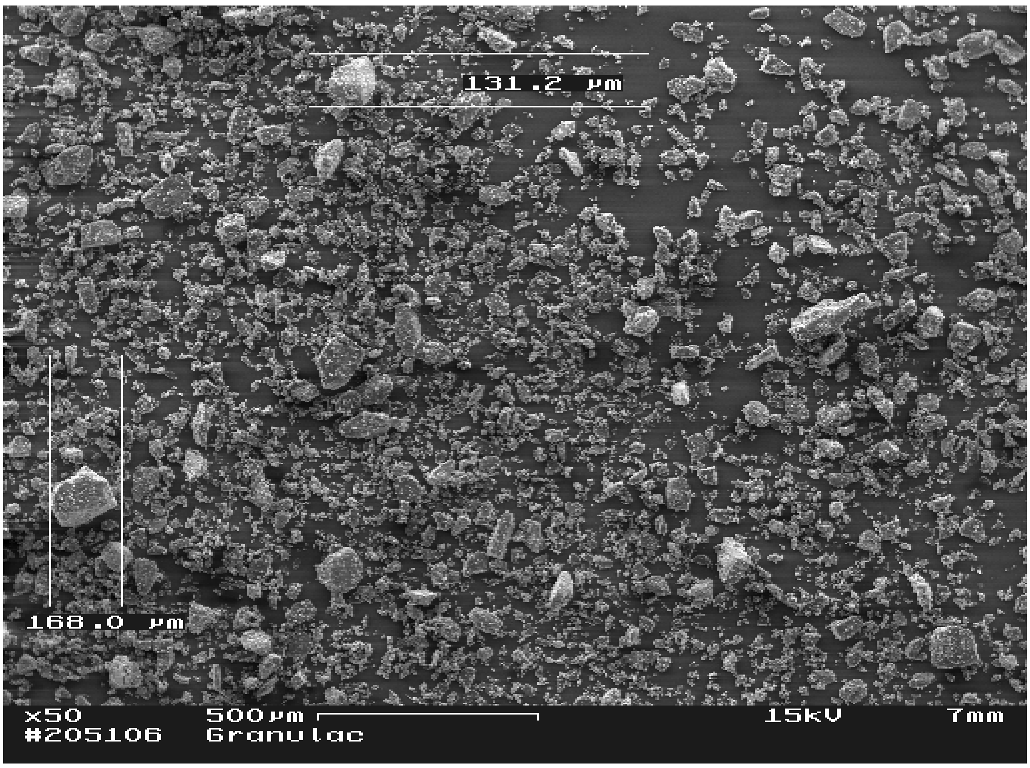


Abbildung 4-2 *REM-Aufnahme von GranuLac in 50 facher Vergrößerung*

Die Wasserdampf-Sorptionsisotherme verdeutlicht, dass GranuLac nahezu linear mit steigender relativer Feuchte Wasser adsorbiert, jedoch maximal 0,06 % Wasser aufzunehmen vermag.

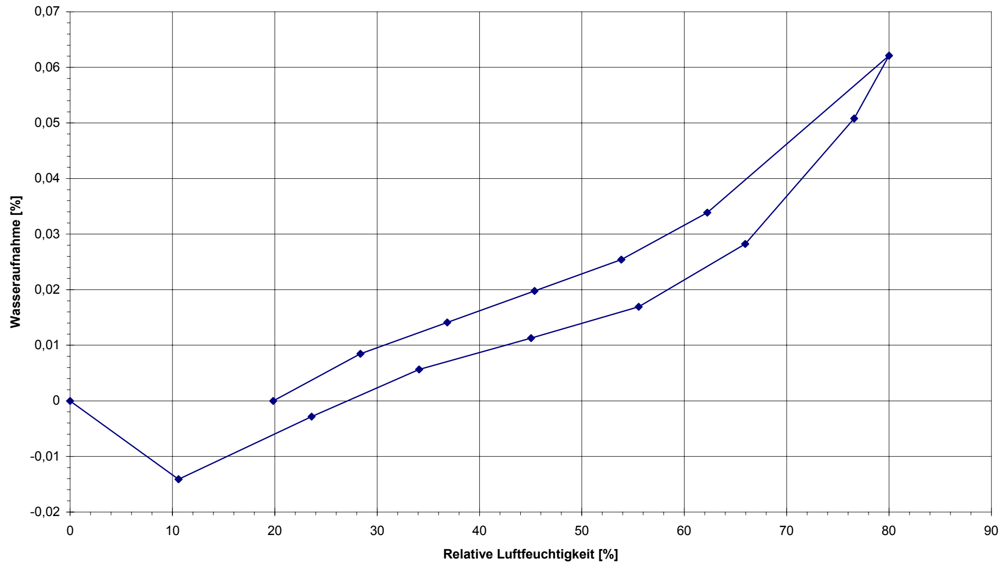


Abbildung 4-3 *Wasserdampf-Sorptionsisotherme von GranuLac® 200 Meggle*[131]

Als Sprühflüssigkeit für die Klebstoffgranulation wird eine 5 % ige (m/V) Polyvinylpyrrolidonlösung benutzt. Diese Substanzklasse ist in der pharmazeutischen Praxis weit verbreitet, da die Polymere sehr gut spezifiziert sind, ein breiter Viskositätsbereich der Lösungen einstellbar ist und diese sehr gute Klebkräfte aufweisen[49].

Tabelle 4-2 *Stoffdaten von Plasdone K-90*[132, 133]

Plasdone K-90	
Hersteller	ISP Technologies INC., Wayne, USA
Chemische Bezeichnung	Polyvinylpyrrolidon K 1-Ethenyl- 2-pyrrolidinone - homopolymer Kollidon
Molmasse	Ca. 1.200.000 g/mol
Wassergehalt	< 5 %
Hygroskopizität	stark hygroskopisch
Wahre Dichte	1,17..1,18 g/cm³
Schüttdichte	0,11..0,25 g/cm³
Löslichkeit	löslich in Wasser, Säuren, Chloroform, Ethanol, Ketonen, Methanol unlöslich in Ether
K-Wert	85..95 beschreibt die Viskosität einer wässrigen Lösung im Verhältnis zu der von reinem Wasser
Viskosität	150 cPa s (5 % ige wässrige Lösung bei 25 °C)

Quervernetztes Polyvinylpyrrolidon dient mit einem Massengehalt von 3 % als sehr effektives Tablettensprengmittel.

Tabelle 4-3 *Stoffdaten von Polyplasdone XL*[133]

Polyplasdone XL	
Hersteller	ISP Technologies, INC., Wayne, USA
Chemische Bezeichnung	Cross-linked Polyvinylpyrrolidon Crospovidone 2-Pyrrolidinone, 1-Ethenyl- homopolymer
Wahre Dichte	1,22 g/cm³
Schüttdichte	0,213 g/cm³
Stampfdichte	0,273 g/cm³
Spezifische Oberfläche BET	1,03 m²/g
D[v; 0,5]	41,54 µm
Hygroskopizität	maximale Wassersorption etwa 60 %
Löslichkeit	unlöslich in Wasser unlöslich in gängigen organischen Lösungsmitteln

Die Laserstreulichtanalyse zeigt, dass Polyplasdone XL eine sehr einheitliche Korngrößenverteilung aufweist:

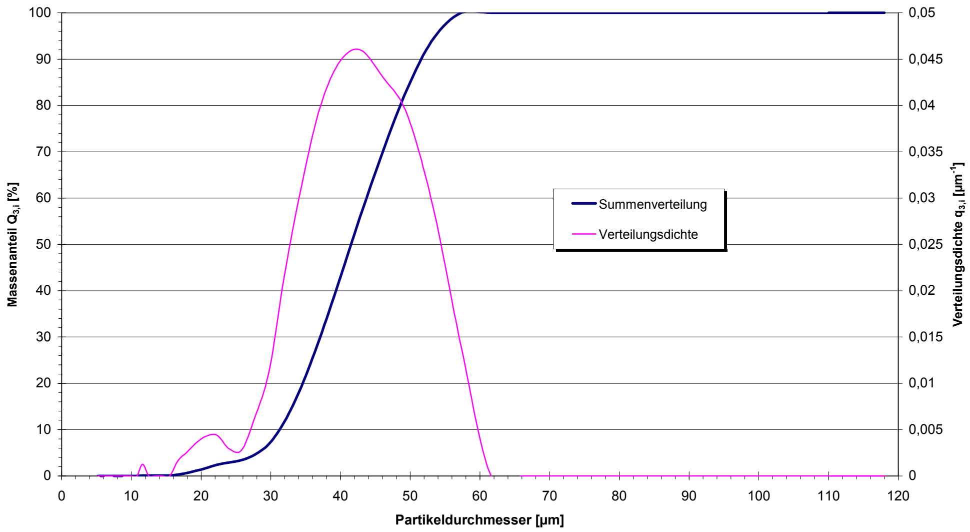


Abbildung 4-4 *Partikelgrößenverteilung von Polyplasdone® XL bestimmt mit Trockendispergierung PS 64 am Malvern Particle-Sizer 2600*

REM-Aufnahmen zeigen die eigentümliche Struktur dieses Hilfsstoffes:

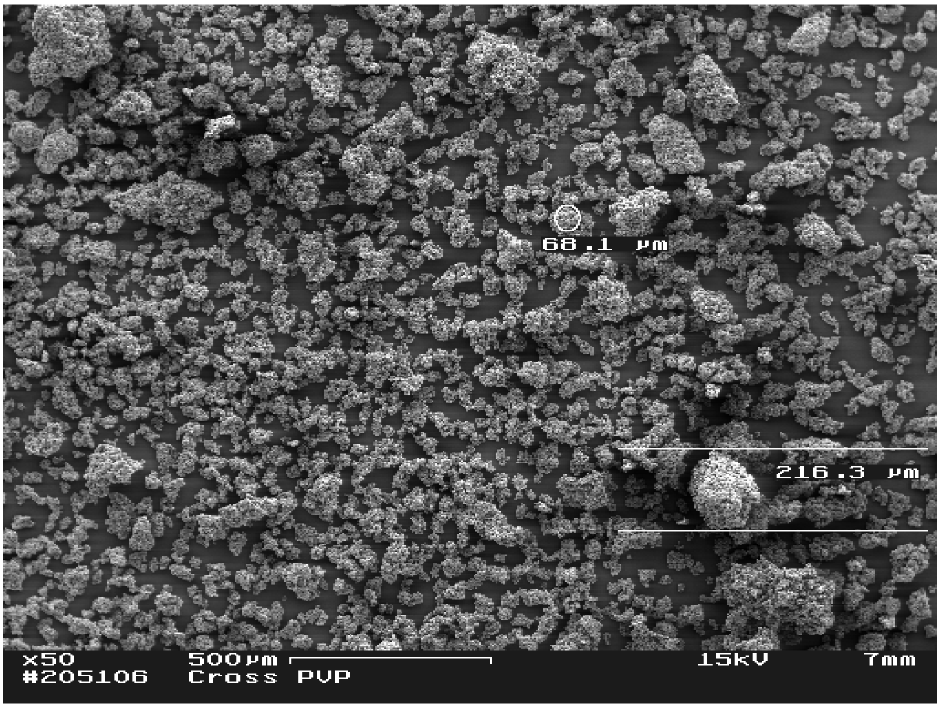


Abbildung 4-5 REM-Aufnahme von Polyplasdone XL in 50 facher Vergrößerung

In der 500 fachen Vergrößerung wird die schwammartige Struktur des Cross PVP deutlich; es ist kein Feinanteil zu finden:

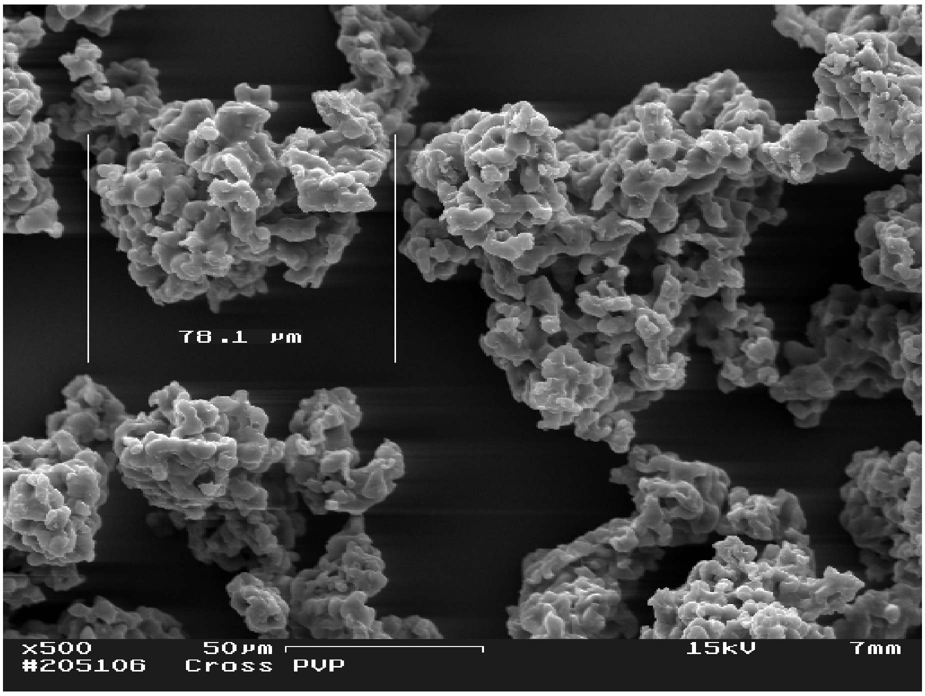


Abbildung 4-6 REM-Aufnahme von Polyplasdone XL in 500 facher Vergrößerung

Die Wasserdampf-Sorptionsisotherme belegt, dass Polyplasdone XL – in Übereinstimmung mit seiner Funktion als Sprengmittel – ein sehr großes Wasseraufnahmevermögen aufweist:

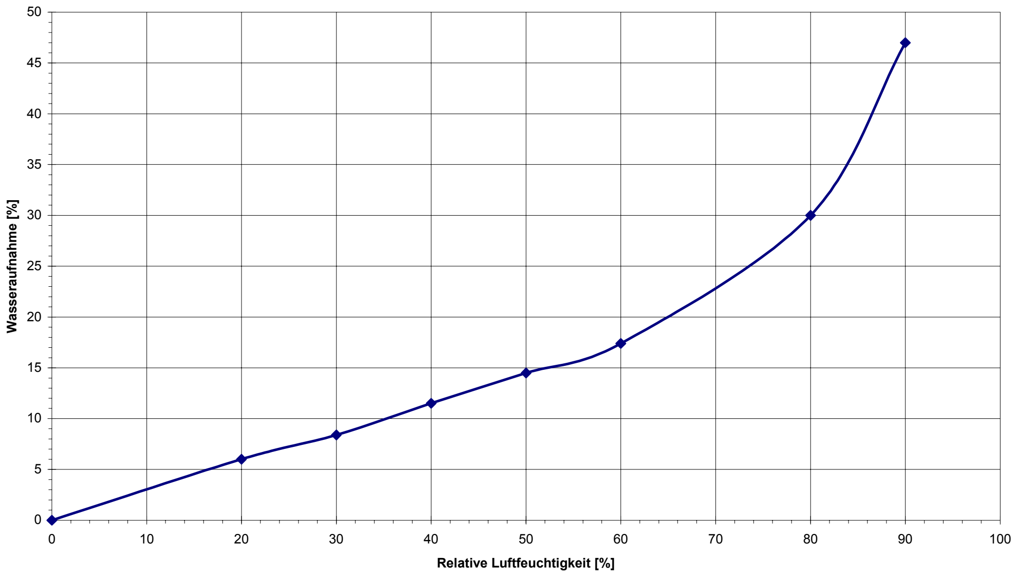


Abbildung 4-7 *Wasserdampf-Sorptionsisotherme bei 25 °C*[134]

4.2 RASTERELEKTRONENMIKROSKOPIE

Da Aussagen über äußere Form und innere Struktur der Granulate nicht in hinreichendem Maße mit lichtmikroskopischen Verfahren getroffen werden konnten, wurden an einem DSM 962 Mikroskop der Firma Carl Zeiss GmbH (Oberkochen, Deutschland) rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen gemacht. Die Proben wurden auf eine selbstklebende Leitfolie aufgestreut, vorsichtig mit Druckluft von losen Bestandteilen befreit und danach mit einer Gold-Palladium-Legierung bedampft.

4.3 SIEBANALYSE

Die Siebanalysen werden mit einer Analysensiebmaschine AS 200 control der Firma Retsch GmbH & Co. KG (Haan, Deutschland) durchgeführt. Diese Anlagen weisen eine mikroprozessor-gesteuerte Regelung der Schwingungsintensität auf und stellen damit eine hohe Reproduzierbarkeit der Ergebnisse sicher[135]. Ein spezieller Antrieb sorgt für eine dreidimensionale Wurfbewegung, welche das Siebgut gleichmäßig über die gesamte Siebfläche wandern lässt.

Abbildung 4-8 *AS 200 control*

Die Analysensiebmaschine erlaubt eine maximale Siebturmhöhe von acht Sieben mit je 50 mm Höhe zuzüglich Auffangboden. Die Siebböden der verwendeten Analysensiebe bestehen aus Drahtsiebgewebe mit rechteckiger Maschenform. Die Siebfläche weist einen Durchmesser von 200 mm auf. Der Hersteller empfiehlt folgende maximale Aufgabemengen[136]:

Tabelle 4-4 *Aufgabemengen auf Siebböden mit 200 mm Durchmesser*

Nennweite der Sieböffnung [µm]	Empfohlene maximale Materialmenge bei 200 mm Durchmesser der Siebfläche [cm^3]
1000	150
500	100
200	60
63	35
20	20

Alle Siebungen werden mit einer Aufgabemasse von 100 g durchgeführt. Die Siebdauer beträgt jeweils 10 Minuten und wird mit genau 3000 Schwingungen pro Minute durchgeführt. Die Schwingungshöhe beträgt bei allen Siebungen jeweils 1,5 mm.

4.4 LASERDIFFRAKTOMETRIE

Die Messung der Korngrößenverteilungen der Schüttgüter erfolgt in dieser Arbeit mittels Laserdiffraktometrie (Synonym: *Laserstreulichtanalyse* LSA). Messgröße ist dabei das von einem Partikelkollektiv erzeugte, in einem bestimmten Raumwinkel erfasste Beugungsmuster einer Laserlichtquelle, die das Messvolumen mit einem Lichtstrahl konstanter Intensität und Wellenlänge durchleuchtet. Ein Laserbeugungsmessgerät besteht aus einer optischen Bank mit darauf installierter Sende- und Empfangseinheit.

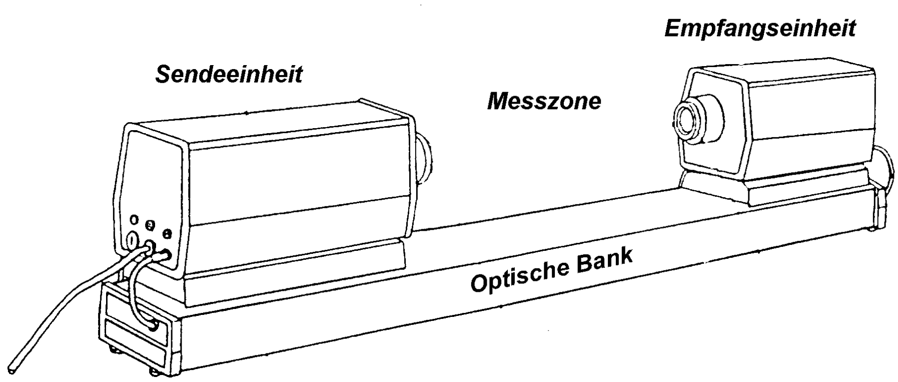


Abbildung 4-9 *Malvern ParticleSizer® 2600*

Die Empfangseinheit bildet das gebeugte Licht mit einem Linsensystem (bestehend aus sogenannten Fourier-Linsen) auf die Messebene ab. Ist die Wellenlänge des Lichtes, das in eine Probe einfällt, sehr viel kleiner als die Teilchendurchmesser, so gilt vereinfacht nach der Fraunhofer-Theorie[137], dass bei gegebener, konstanter Wellenlänge Licht an großen Partikeln mit hoher Intensität um kleine Winkel, an kleinen Partikeln hingegen mit niedriger Intensität um große Winkel gebeugt wird. Die Gesamtintensität des gebeugten Lichts hängt von der Zahl der Partikeln im Messvolumen ab. Durch eine Fourierlinse wird das Beugungsmuster aller Einzelpartikeln auf einen Multi-

Element-Detektor abgebildet. Partikeln gleicher Größe verursachen an beliebigen Positionen im Lasermessstrahl das gleiche Beugungsmuster in der Messebene. Die Positionierung des Probenaufgabesystems ist demzufolge unkritisch. In dieser Arbeit wurde ein Laser-Granulometer ParticleSizer® 2600 der Firma Malvern Instruments GmbH (Herrenberg) eingesetzt. Das Gerät verwendet einen Helium-Neon-Laser mit einer Wellenlänge von λ = 633 nm. Der Detektor besteht hierbei aus 32 konzentrischen Segmenten. Die Flächen der Detektor-Ringelemente nehmen von innen nach außen, d. h. von kleinen zu großen Streuwinkeln, logarithmisch zu[138]. Durch Verwendung unterschiedlicher Sammellinsen kann eine Partikelgröße zwischen 1,2 und 564 µm bestimmt werden.

Tabelle 4-5 *Arbeitsbereiche des Particle Sizer® bei Verwendung unterschiedlicher Linsen*

Brennweite der Linse [mm]	Untergrenze Messbereich [µm]	Obergrenze Messbereich [µm]
63	1,2	118
100	1,9	188
300	5,8	564

Vor jeder Messung wird ein Nullabgleich durchgeführt, um eventuelle Fremdlichteinflüsse kompensieren zu können. Die Intensitätsverteilung des gebeugten Lichts wird von einem 286 PC AT 12 MHz mit 1 MB Hauptspeicher mit dem von Malvern entwickelten Programm SB.0B erfasst. Die Messdauer für eine Probe kann frei gewählt werden. Die Partikelkonzentration in der Messzone darf nicht zu niedrig sein, da sonst das Messsignal zu schwach ist. Ist die Anzahl der Partikeln im Laserstrahl hingegen zu hoch, wird die Messung durch Mehrfachbeugung gestört. Aus diesem Grund wird vor jeder Messung eine Überprüfung der Lichtintensität am Detektor unter den herrschenden Messbedingungen durchgeführt. Die zeitlichen Mittelwerte der Lichtintensitäten werden als Messwerte für ein nummerisches Auswerteverfahren gespeichert. Von einem Startwert einer Partikelgrößenverteilung ausgehend errechnet die Malvern-Software das dementsprechende theoretische Beugungsmuster. Mit einem Iterationsverfahren wird diese Partikelgrößenverteilung solange angepaßt, bis die Abweichung von theoretisch zu erwartender zu praktisch gemessener Streulichtverteilung vorgegebene Grenzwerte unterschreitet. Die Kongruenz des mit einer analytischen Methode gefundenen Mittelwertes mit dem wahren Wert wird als **Richtigkeit** bezeichnet[139,*]. Laut Hersteller weicht der mit dem Particle Sizer® 2600 bestimmte mittlere Partikeldurchmesser um maximal ± 4 % vom wahren Wert ab. Zur Überprüfung dieser Angabe wird ein sogenanntes Standard-Reticule PS 62 vermessen. Hierbei handelt es sich um ein in Glas fixiertes und mikroskopisch ausgewertetes Partikelkollektiv mit einem mittleren Durchmesser von 46,5 µm. Eine Zehnfachbestimmung ergab

[*] *Von der Richtigkeit deutlich abzugrenzen ist der Begriff der **Präzision**, die als Wiederholstandardabweichung (d.h. wiederholte Bestimmung in einem Labor von einer Person mit derselben Charge und demselben Gerät) definiert ist*

einen Mittelwert von 47,11 µm mit einer relativen Standardabweichung von 0,29 %. Die Richtigkeit dieses Messsystems wird daher als hinreichend bewertet.

Um die Ergebnisse des Malvern Particle Sizers mit Trockendispergierung mit einem alternativen Messverfahren zu vergleichen, wurde ein Coulter® LS 230 (Small volume module, Software: Control Program, Version 2.11, März 1997, Coulter Electronics GmbH, Krefeld, Deutschland) benutzt[140]. Das Messprinzip ist dem des Malvern Particle Sizers vergleichbar (Laser mit 4 mW Leistung, Messwellenlänge 750 nm, 126 Photodetektoren Dreieranordnung, Messbereich 0,04 bis 2000 µm). Zusätzlich verfügt der Coulter® LS 230 über eine sogenannte „*Polarisation Intensity Differential Scattering*“ (PIDS)-Messanordnung, mit welcher Partikelgrößeninformationen für Teilchen im Größenbereich von 0,1 bis 0,4 µm zur Verfügung gestellt werden. Die PIDS-Messung erfolgt sequentiell mit polarisiertem Licht der Wellenlängen 900, 600 und 450 nm.

Abbildung 4-10 *Coulter® LS 230*

Die Probenaufgabe erfolgt in der Art, dass das Schüttgut in einer inerten Flüssigkeit dispergiert wird und als dünner Suspensionsstrahl im rechten Winkel zum hindurchgeleiteten Laserstrahl durch eine Messzelle fließt. Da die zu messende Suspension in einem geschlossenen Kreislauf umgewälzt wird, ist der Probenbedarf sehr gering. Nachteilig ist hingegen der hohe Dispersionsmittelbedarf. Da keine Flüssigkeit gefunden werden konnte, welche nicht jeweils eine der Komponenten des Standardgranulats anlöst, ist mit diesem Messsystem lediglich die getrennte Bestimmung der Primärpartikeln möglich.

Da Gasblasen die Messung stören würden, muss das Dispersionsmittel vor der Benutzung durch 10 minütige Behandlung im Ultraschallbad entgast werden. Durch die Befüllung der Messzelle könnten Luftblasen im Messmedium gebildet werden. Diese werden durch maschinelles Rühren anhand einer Standardprozedur entfernt. Anschließend führt der Coulter LS 230 durch eine Hintergrundanalyse einen Nullabgleich durch. Abschließend wird der Messzelle gerade soviel Probe in Form einer konzentrierten Suspension zugeführt, bis die Probenkonzentration vom Messgerät als optimal bewertet wird.

Vergleichsmessungen mit der Beispielsubstanz gesiebter Pharmatose® DCL11 (Firma DMV, Veghel, NL) der Kornklasse 180..200 µm mit dem Coulter® LS 230 und dem Malvern Particle Sizer führten zu guten Übereinstimmungen, wie folgende Abbildung zeigt:

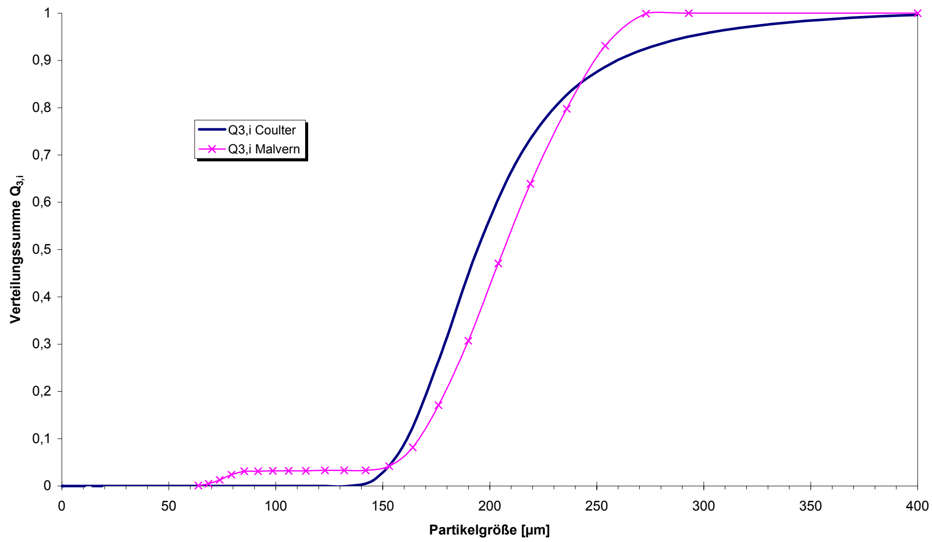


Abbildung 4-11 *Vergleich der Messergebnisse von Coulter® LS 230 und Malvern Particle Sizer®*

$D[v; 0,5]_{Malvern}$ = 204,95 µm $D[v; 0,5]_{Coulter}$ = 207,4 µm

4.5 KARL-FISCHER TITRATION

Alternativ zur Bestimmung der Masse an Wasser im Ansatzbehälter des GPCG über die Massenbilanzierung sollte ein Referenzverfahren verwendet werden, um Aussagen über die Richtigkeit der Messergebnisse treffen zu können. Um den instrumentellen sowie den finanziellen Aufwand zu minimieren wurde der Entschluß gefasst, im Verlauf einer Granulatherstellung Proben zu ziehen und deren Feuchtegehalt mittels Karl-Fischer-Titration zu bestimmen*. Bei Kenntnis der Masse an trockenen Primärpartikeln sowie dem aktuellen Feuchtegehalt des Produkts kann auf die Gesamtmasse an Wasser in der Anlage geschlossen werden. Sämtliche Titrationen werden an einem Karl-Fischer-Automat 701 KF Titrino® (Firma Metrohm AG, Herisau, Schweiz) mit zugehörigem Titrierstand 703 TI durchgeführt[141]. In das gegen feuchte Umgebungsluft isolierte Reaktionsgefäß wird Hydranal® Solvent (Riedel-de Haën AG, Seelze, Deutschland) vorgelegt. Dieses Lösungsmittel besteht aus Imidazol, Schwefeldioxid und Methanol. Hierzu wird die Probe zugegeben. Ein Magnetrührer muss die Vorlage kräftig mischen, darf jedoch keinen zu tiefen Rührtrichter oder auch keine Luftblasen bilden. Eine Doppelplatinelektrode taucht in die zu titrierende Lösung ein. Nun wird der Iod-haltige Hydranal® Titrant (Firma Metrohm AG, Herisau, Schweiz) langsam zugeführt. Die Erkennung des Endpunktes der Titration erfolgt mit der Dead-stop-Methode: An die Elektroden wird eine konstante Gleichspannung angelegt. Solange die Elektroden in Gegenwart von Wasser polarisiert sind, fließt nur ein minimaler Reststrom. Sobald nach Überschreiten des Titrationsendpunktes sämtliches Wasser durch das KFR gebunden ist, führt der Überschuß an

freiem Iod zu einer Gelbfärbung der Lösung sowiezu einer Depolarisation der Elektroden, in deren Folge ein Stromanstieg registriert wird. Unmittelbar vor Beginn eines Granulationsprozesses wird eine Titerbestimmung des Karl-Fischer-Reagenz durchgeführt. Zu diesem Zweck werden mit einer Hamilton-Mikrospritze durch den Septumstopfen im Titriergefäß-Oberteil 30 µl destilliertes Wasser zugesetzt. Aus dem Verbrauch an KFR bis zum Erreichen des Titrationsendpunktes wird ein Faktor ermittelt, mit welchem bei allen folgenden Versuchen auf die Masse an Wasser in der Vorlage geschlossen wird.

Abbildung 4-11 *Metrohm 701 KF Titrino® mit 703 TI Stand*

Während eines Granulationsprozesses werden mit dem Probenzieher zu einem bestimmten Zeitpunkt so viele Probenzüge durchgeführt, bis ein 10 ml-Schnappdeckelgläschen gerade vollständig mit Material gefüllt ist. Hierdurch wird verhindert, dass Wasser aus der Probe in den überstehenden Luftraum diffundiert und damit das Ergebnis verfälschen würde. Auf einer Analysenwaage wird ein Wägeschiffchen aus Glas tariert und in dieses ca. 400 mg wasserhaltiges Granulat zügig eingewogen. Die Probe wird in das Reaktionsgefäß überführt und das leere Wägeschiffchen zurückgewogen. Die zu untersuchende Probe muss in dem Hydranal® Solvent durch Rühren möglichst fein dispergiert werden, so dass das Wasser quantitativ erfasst wird und nicht etwa im Inneren größerer Agglomerate eingeschlossen bleibt. Nach Ende einer Bestimmung muss das Reaktionsgefäß vollständig entleert und gereinigt werden. Nach Zugabe von Solvent wird die Konditionierung der Vorlage automatisch durchgeführt. Erst jetzt kann die nächste Messung durchgeführt werden.

4.6 BESTIMMUNG DER FRIABILITÄT DER GRANULATE

Die Granulatfestigkeit ist ein wichtiges Kriterium in Bezug auf Transport- und Verarbeitungseigenschaften. Als Beispiel sei die Füllung einer Rundläufertablettenpresse mit einem Rührflügelfüllschuh genannt: Die zu verarbeitende Pressmasse muss den mechanischen Beanspruchungen der Rührflügel soweit standhalten, dass nicht das Granulat aufgrund der Reibungsbeanspruchung zermahlen wird und dabei seine Fließfähigkeit einbüßt.

Da die Bruchfestigkeit einzelner Granulen nur mit relativ hohem instrumentellem Aufwand zu messen ist, wird hier lediglich die Friabilität der Granulate bestimmt. Das EuAB sieht keine derartige Untersuchung vor. Zur Durchführung eines Abriebtests für Granulate finden sich jedoch in der Literatur verschiedene Vorschläge:

* *Es findet keine chemische Reaktion des Iods mit dem Lactose-Monohydrat statt (vergleiche EuAB-Monographie von Lactose-Monohydrat)*

- SUCKER[142] setzt die Siebfraktion 710 – 500 µm einer 90 minütigen Beanspruchung im Turbulamischnung bei 50 Upm aus. Nach anschließender Luftstrahlsiebung auf 500 µm wird der Abrieb als prozentualer Anteil des Masseverlustes ermittelt
- JÄGER[143] überführt das Schüttgut in einen modifizierten Friabilitätstester und forciert die Beanspruchung der Partikeln durch Zugabe von Glaskugeln
- MURTONIEMI[144] unterzieht das Granulat einer 5 minütigen Belastung im Turbulamischer, ebenfalls unter Zusatz von Glaskugeln

Da die Zugabe von Glaskugeln zum Funktionsprinzip einer Kugelmühle überleitet und dies keine realistische Beanspruchung für Granulatpartikeln darstellt, wird die Friabilität hier dahingehend geprüft, dass als Beanspruchung ein 30 minütiger Umwälzvorgang in einem Turbulamischer (Typ T2A, Willi A. Bachofen AG, Basel, Schweiz) gewählt wird. 100 g Probe werden auf einem Sieb der lichten Maschenweite von 200 µm einer Luftstrahlsiebung (Typ A320 LS, Firma Alpina, Augsburg) unterzogen. In einem Vorversuch wird die optimale Siebdauer durch Auftragung des Siebrückstandes in Abhängigkeit von der Zeit ermittelt. In Anlehnung an SUCKER werden weitere 100 g Probe in ein 1000 ml-Schraubglas überführt und eine halbe Stunde mit 50 Upm im Turbulamischer bewegt. Mit dem derart beanspruchten Schüttgut wird jetzt ebenfalls die Luftstrahlsiebung durchgeführt. Der prozentuale Masseverlust des Rückstandes wird als Abrieb ermittelt:

Abbildung 4-11 *Turbulamischer Typ T2A*

$$Abrieb \equiv \frac{m_{Rückstand} - m_{Rückstand\ nach\ Beanspruchung}}{m_{Rückstand}} \quad (4.1)$$

Dieses Bestimmungsverfahren ist an der durchschnittlichen Partikelgröße des Schüttgutes orientiert. Die Einwaage an Schüttgut in das Mischgefäß zu Beginn der Beanspruchung wird gleichzeitig als Auftragsmasse auf das Luftstrahlsieb angesehen. Sollte der Feinanteil nicht quantitativ auf das Luftstrahlsieb überführt werden können, da z.B. ein Teil an der Gefäßwand adhäriert, ist dies für das Ergebnis der Luftstrahlsiebung unrelevant, da jene Partikeln deutlich kleiner als 200 µm sind und daher bei der Siebung im Siebdurchgang gewesen wären. Derartige Feinstaub-Verluste sind folglich für die Bestimmung der Friabilität unkritisch.

Um eine geeignete Siebdauer sicherzustellen, wird die Luftstrahlsiebung des Standardgranulates im Minutentakt unterbrochen und der Siebrückstand gewogen.

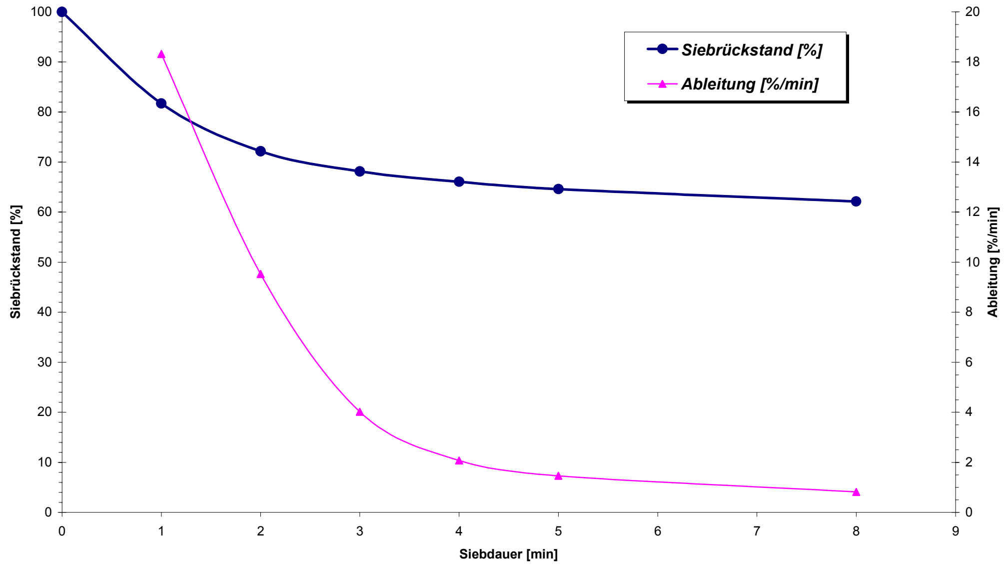


Abbildung 4-12 *Bestimmung der Siebdauer aus der zeitlichen Änderung des Siebrückstandes*

Nach 8 min beträgt die Änderung des Siebrückstandes mit der Zeit nur noch 0,8 %/min. Da längere Siebdauern die Trennung nicht verbessern würden sondern eher zu weiterem Abrieb des Granulates führen dürften, wird die Siebdauer auf 8 min festgelegt.

5 EXPERIMENTELLER TEIL

5.1 AUFBAU DES WIRBELSCHICHTGRANULATORS GLATT GPCG

Der Glatt Powder Coater Granulator 1.1 (im folgenden **GPCG** bezeichnet) ist ein Laborgerät zur Entwicklung von Rezepturen. Die Maschine ist nur für den Betrieb mit nicht explosiblen, nicht brennbaren Stoffen der Gefahrenklasse ST 0 geeignet. Der GPCG ist in der vorliegenden Ausstattung mit einem konischen Produktbehälter für das Top-Spray-Verfahren bestückt. Der Granuliereinsatz weist ein Behälternutzvolumen von ca. 5 l auf.

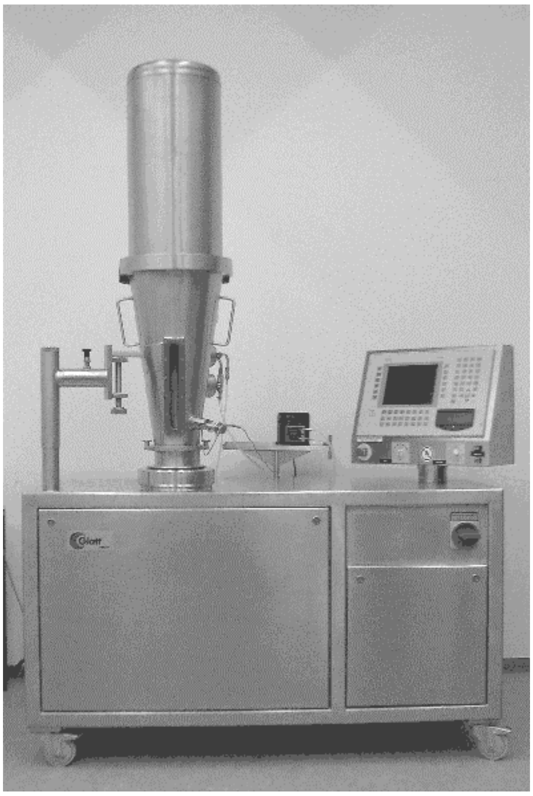


Abbildung 5-1 *Glatt WSG-Laboranlage GPCG 1.1*

5.1.1 Zuluftleitungssystem

Die Zuluft wird der Raumluft entnommen. Nach Passieren eines Filters wird die Zuluft in einer Elektroheizung auf die Solltemperatur aufgewärmt.

5.1.2 Arbeitsturm und Granuliereinsatz

Der Arbeitsturm besteht aus dem austauschbaren Arbeitsbehälter für das vorgesehene Verfahren (Top-Spray, Wurster oder Rotor) sowie dem Filtergehäuse. Bei der für die vorliegende Arbeit verwendeten Anlage ist lediglich ein Granuliereinsatz für das Top-Spray-Verfahren verfügbar. Der an einem Schwenkarm befestigte Materialbehälter wird während des Betriebes der Anlage pneumatisch gegen die oberhalb installierten Rückhaltefilter gepresst. Für Befüllungs- oder Entladezwecke wird der Granuliereinsatz abgesenkt und aus dem Arbeitsturm geschwenkt. Der Materialbehälter enthält:

- Je ein Langfenster vorn und hinten zur Beobachtung des Prozesses
- Zwei Stutzen für die Aufnahme einer Sprühdüse; der nicht verwendete Düsenstutzen wird mit einem Blindstopfen verschlossen

- Einem Feinsieb als Anströmboden mit einer lichten Maschenweite von 100 µm
- Einem Probenentnahmestutzen
- Einem Messstutzen für die Aufnahme eines Temperaturfühlers

5.1.3 Sprüheinrichtung

Die Granulierflüssigkeit wird mit einer stufenlos regelbaren Schlauchpumpe zur Sprühdüse gefördert. Da diese Pumpe nur bezüglich ihrer Drehzahl regelbar ist, muss zunächst ihre volumetrische Dosierung quantifiziert werden. Das folgende Diagramm zeigt das Ergebnis der Förderleistung von Wasser:

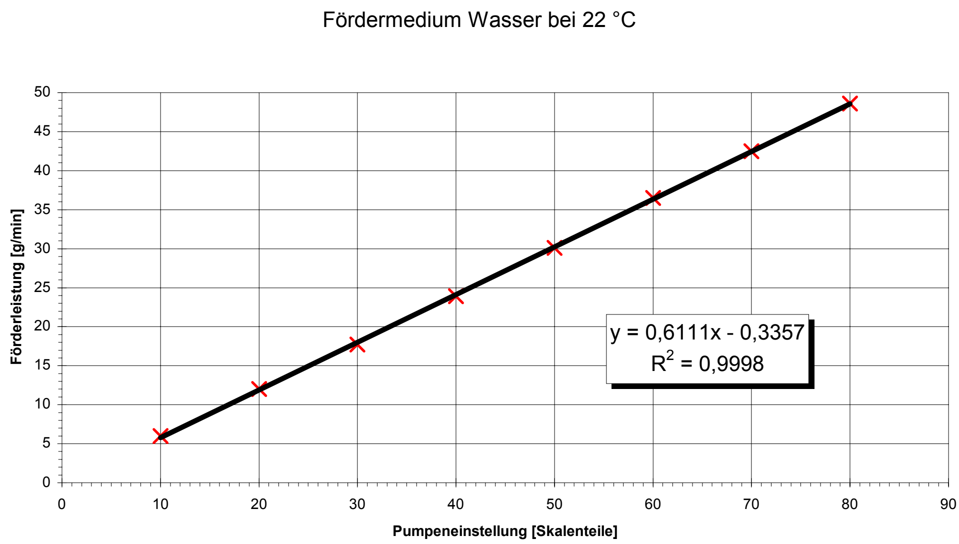


Abbildung 5-2 Förderleistung der Schlauchdosierpumpe

Die eingesprühte Menge an Bindemittellösung wird im Verlauf eines Granulationsprozesses durch eine Analysenwaage (PM 4000, Firma Mettler Toledo, Greifensee, Schweiz) erfasst, welche die Masse des Ansatzgefäßes dieser Lösung wiegt. Vor Beginn jedes Experiments wird das gesamte Pumpsystem vom Ansaugschlauch bis einschließlich der Sprühdüse gefüllt. Wird anschließend während des WSG-Prozesses die Sprühpumpe eingeschaltet, so entspricht die Abnahme der Masse des Vorratsgefäßes unmittelbar der in die Anlage eingesprühten Masse an Granulierflüssigkeit.

Der Granuliereinsatz weist zwei Düsenstutzen für die Aufnahme der Sprühdüse auf. Es wird standardmäßig die obere Sprühposition gewählt, bei welcher die Sprühdüse ein Höhe von 25 cm über dem Anströmboden hat.

Um das zu granulierende Schüttgut gleichmäßig mit einem Bindemittelfilm beschichten zu können, müssen aus der Granulierflüssigkeit feine Tröpfchen hergestellt werden. Dies wird als „*Zerstäuben*" bezeichnet. Zur Vergrößerung der Oberfläche muss die Kohäsion der Materie überwunden werden. Dies erfolgt in einer Sprühdüse, welche hier als sogenannte **Zweistoffdüse** (synonym: *Pneumatische Düse*) gefertigt ist:

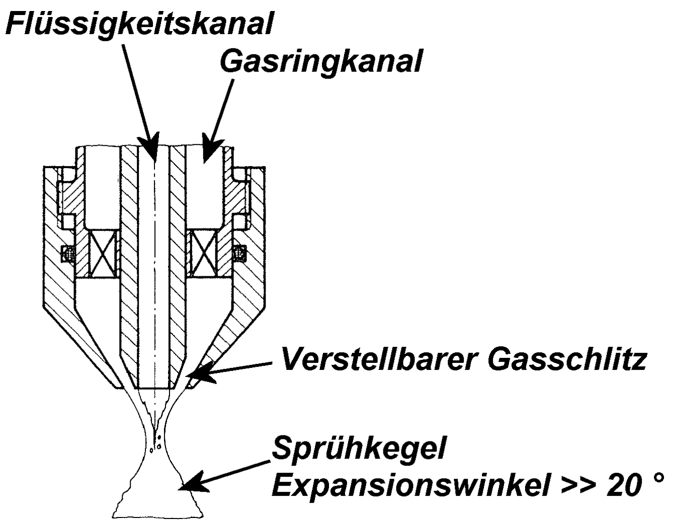


Abbildung 5-3 *Schema einer Zweistoffdüse mit verstellbarem Gasschlitz*

Bei Zweistoffdüsen wird die für das Zerstäuben der Flüssigkeit erforderliche Energie durch das Zerstäubergas geliefert: Durch Entspannung der Druckluft nach Passieren der Düse wird die Flüssigkeit beschleunigt und in einzelne Tröpfchen zerteilt. Aus der hier verwendeten Düsenform resultiert eine sogenannte äußere Mischung, bei welcher die beiden Medien erst nach Verlassen des Sprühkopfes in Kontakt treten. Durch die in Düsennähe entstehende Sekundärströmung wird die Flüssigkeit als Film auf der Ausströmfläche ausgebreitet und zur Abrisskante geschleppt. Hier findet die eigentliche Zerstäubung statt. Aufgrund eines im Gaskanal eingebauten Drallkörpers ist die Ausbreitung des turbulenten Strahls mit einem Expansionswinkel von über 20 ° möglich[145]. Über den verstellbaren Gasschlitz kann die Strahlform beeinflusst werden. Düsen dieses Bautyps erzeugen einen Unterdruck im Flüssigkeitskanal und sind daher selbstansaugend. Um jedoch reproduzierbare Flüssigkeitsraten zu erreichen, wird die Sprühflüssigkeit mit einer Förderpumpe mit relativ niedrigem Druck zugeführt. Mit zunehmendem Zerstäubungsdruck wird die Strahlgeschwindigkeit am Düsenaustritt größer und damit die Zerstäubung feiner. Wird bei konstantem Druck und Flüssigkeitsdurchsatz durch Veränderung des Gasschlitzes der Sprühkegel verbreitert, so werden die Tropfen feiner[146]. Zweistoffdüsen bieten folgende Vorteile:

- Bildung sehr feiner Tröpfchen
- Enge Tropfengrößenverteilung
- Sprühkegel ohne signifikanten Unterschied der Tropfengröße in Kern- und Randzone[147]
- Viskosität der Flüssigkeit ist beliebig
- Leichte Handhabung, auch bei geringer Durchsatzmenge
- Einfache Übertragung der Betriebsparameter aus dem Labormaßstab auf größere Anlagen
- Größte Oberflächenentwicklung bei geringstem Energieaufwand

Um während der Sprühpausen ein Verstopfen der Sprühdüse durch aufsteigende Partikeln zu unterbinden, kann ein konstanter Freiblasdruck vorge-

wählt werden, durch den die Düse mit Pressluft freigehalten wird. Es sei darauf hingewiesen, dass ein Verstopfen der Spühdüse nicht etwa zu einem Anstieg des Sprühluftdruckes führen würde. Es ist daher wichtig, während der Sprühphase die Funktion der Düse visuell oder anhand der Abnahme des Gewichtes der Sprühflüssigkeit zu überprüfen.

5.1.4 Rückhaltefilter

Der im oberen Teil des GPCG installierte Filter trennt die aus der Wirbelschicht ausgetragenen feinen Partikeln aus der Abluft ab. Um die Dichtigkeit der Anlage zu gewährleisten, wird dieser Produktrückhaltefilter zwischen Granuliereinsatz und Filtergehäuse eingesetzt und während des Prozesses durch eine Anpressvorrichtung eingeklemmt. Der Stauchfilter kann durch zwei Pneumatikzylinder jeweils halbseitig abgerüttelt werden. Die feinen Partikeln stehen damit wieder für die Aufbaugranulation zur Verfügung, und der Filter kann über längere Betriebszeiten nicht verstopfen. Das Abrütteln des Rückhaltefilters kann beim GPCG auf zwei Arten erfolgen:

a) Synchron: Durch Schließen der beiden Kammerklappen kommt der Volumenstrom zum Erliegen; der Filter wird komplett abgerüttelt. Dies birgt durch das Zusammenbrechen der Wirbelschicht die Gefahr einer dauerhaften Festbettbildung. Die Maschine ist so gesteuert, dass während des synchronen Abrüttelns des Rückhaltefilters die Sprühflüssigkeitspumpe ausgeschaltet ist.

b) Asynchron: Durch Schließen nur einer Kammerklappe wird der Volumenstrom über die zweite Öffnung geleitet. Somit bleibt das Wirbelbett unverändert aufrechterhalten, und der Sprühvorgang muss nicht unterbrochen werden.

5.1.5 Abluftleitungssystem

Die Luft wird durch einen Saugventilator durch die Anlage gesogen. Dies hat den Vorteil, dass bei eventuellen Leckagen kein Produkt die Anlage nach außen hin verlassen kann. Ein weiterer Vorzug dieser Art der Luftführung besteht darin, dass mit einem 10 cm oberhalb des Anströmbodens installierten Probenentnahmestutzens während des laufenden Prozesses Granulat entnommen werden kann.

Sämtliche Abluftleitungen sind aus gut wärmeleitendem Edelstahl gefertigt. Nachdem die feuchte Abluft den Granuliereinsatz verlassen hat, könnte es durch Abkühlung an den Rohrwänden zur Wasserkondensation kommen. Um diesen Effekt zu verhindern, sind die Abluftleitungen zusätzlich mit handelsüblichen Schaumstoff-Rohrisolationen mit einer Wandstärke von 13 mm versehen worden.

Die Luftmengensteuerung erfolgt über eine stufenlos einstellbare Abluftklappe; der Ventilator arbeitet immer mit konstanter Leistung. Folgender Graphik ist der experimentell ermittelte Zusammenhang zwischen Abluftklappenöffnung und daraus resultierendem Volumenstrom zu entnehmen:

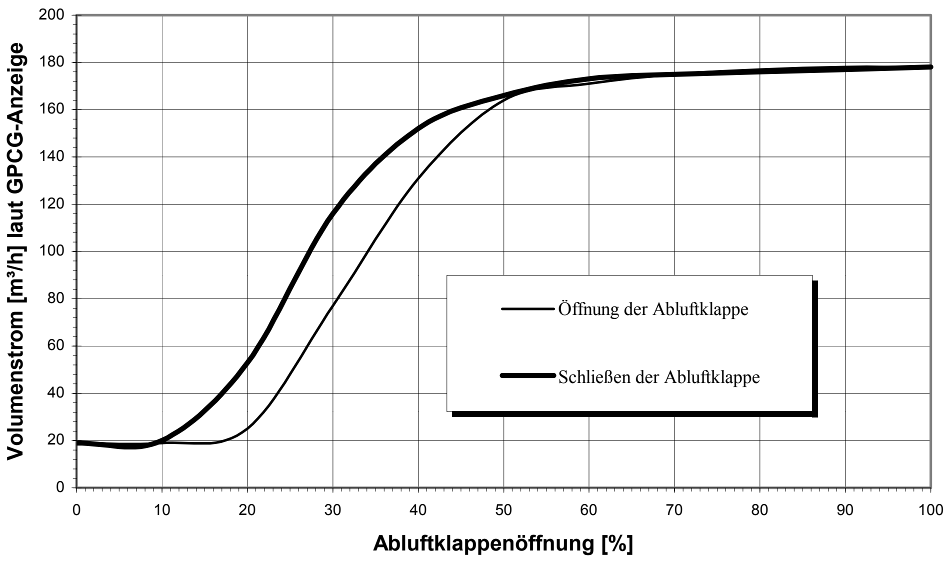


Abbildung 5-4 *Korrelation Abluftklappenstellung zu resultierendem Volumenstrom*

Dieser Abbildung kann entnommen werden, dass eine Veränderung des Öffnungsgrades der Abluftklappe sich im Intervall 10 bis 50 % auf den Volumenstrom auswirkt. Aus geometrischen Gründen hat eine darüberhinausgehende Öffnung keinen weiteren nennenswerten Einfluß auf den Luftdurchsatz. Die Hysterese zwischen Öffnung und Schließen der Abluftklappe liegt im Einbau des Positionsgebers begründet: Der Öffnungswinkel wird nicht an der Klappe selbst, sondern indirekt an dem sie steuernden Pneumatikzylinder gemessen. Aus dem Spiel dieser Mechanik resultiert die Ungenauigkeit der Messung. Der aufgezeigte Zusammenhang zwischen Abluftklappenöffnung und Volumenstrom gilt nur für die leere Anlage. Während des Granulationsbetriebs steigt der Strömungswiderstand an, und damit nimmt der Volumenstrom bei gleicher Abluftklappenposition ab. Der Luftmengendurchsatz durch den GPCG kann auf zwei Arten geregelt werden:

a. Sollwert Abluftklappenöffnung: Der Öffnungswinkel wird durch den Bediener festgelegt; der Volumenstrom ändert sich mit dem Betriebszustand der Anlage
b. Sollwert Volumenstrom: Die Anlagensteuerung implementiert einen Regelkreis, mit welchem der Volumenstrom auf einem konstanten Wert gehalten wird. In Praxis zeigt sich dabei jedoch ein intensives Einschwingverhalten dieses Regelkreises

Vor dem Ventilator sind eine Nachfilterkassette sowie ein Finalfilter installiert. Ihre Funktion besteht darin, ein Verschmutzen des Saugventilators durch die durch den Produktrückhaltefilter hindurchgetretenen Partikeln zu verhindern. Dem Ventilator ist ein Schalldämpfer nachgeschaltet. Die Abluft wird quantitativ mit Hilfe des mit geringem Unterdruck arbeitenden hausinternen Absaugsystemes entfernt.

5.1.6 Anlagensteuerung

Der GPCG wird über das Operator Interface Terminal OP 35 gesteuert. Am Bedienpult werden zusätzlich Anlagezustände angezeigt sowie gegebenenfalls auftretende Störfälle signalisiert. Die von der Herstellerfirma als „*ECOVIEW*“ bezeichnete Steuerung ist in SIMATIC STEP 5 programmiert.

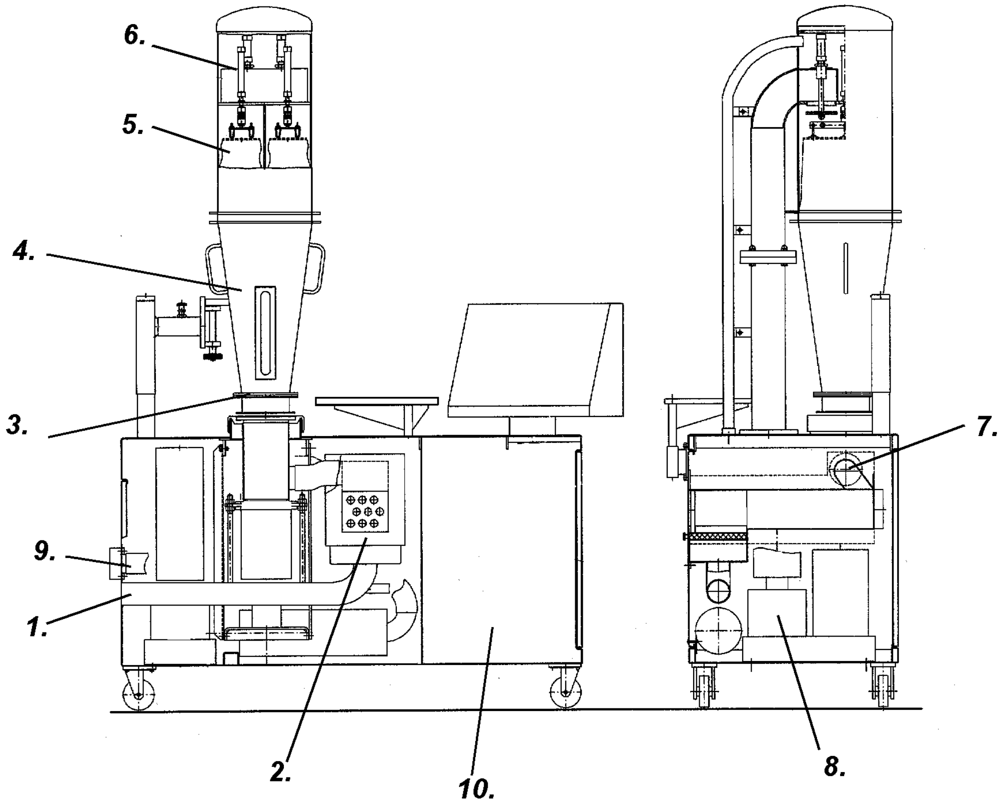


Abbildung 5-5 *Konstruktiver Aufbau des GPCG*

1. Luftansaugung ***2. Elektroheizung*** ***3. Anströmboden***
4. Produkteinsatz mit Sprühsystem ***5. Produktrückhaltefilter*** ***6. Rüttelzylinder***
7. Abluftklappe ***8. Saugventilator*** ***9 Abluftgräting***
10. Steuerschrank mit Bedienpult

5.2 AUSGANGSSITUATION DER INSTRUMENTIERUNG

Im Auslieferungszustand umfasste der GPCG die in Abbildung 4-6 zusammengestellte Instrumentierung. Eine Messung der Luftfeuchten, des Luftdruckes sowie der Sprühflüssigkeitsmasse war nicht möglich. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde mit einem Pitotrohr gemessen, welches unmittelbar hinter dem Frischlufteinlaß positioniert war und damit völlig falsche Werte lieferte. Die Regelungssystem der Zulufttemperatur führte zu Schwankungen um den Sollwert von über 10 °C und war damit absolut unbefriedigend. Am Anfang dieser Arbeit standen daher umfangreiche Umbaumaßnahmen des GPCG mit der einhergehenden Anpassung der Messwerterfassungssoftware.

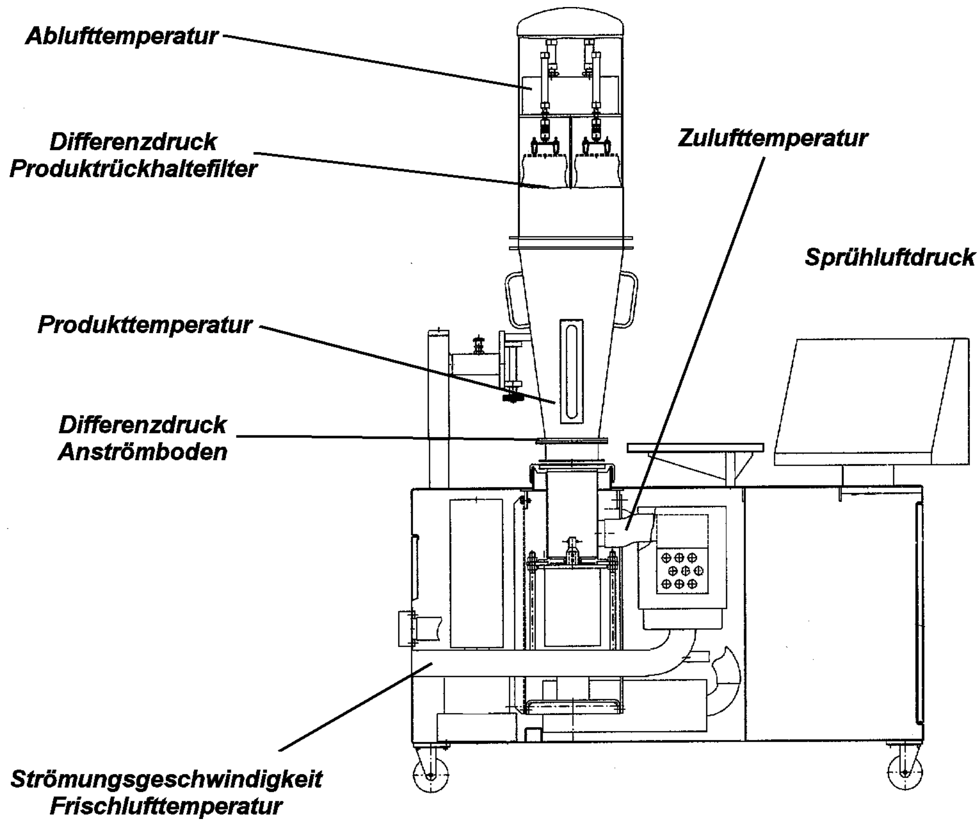


Abbildung 5-6 Instrumentierung des GPCG vor Aufnahme der Umbaumaßnahmen

5.3 INSTRUMENTIERUNG NACH ABSCHLUß DER UMBAUMAßNAHMEN

Als Ergebnis der Nachrüstungen ermöglicht der GPCG jetzt die Aufzeichnung folgender Messgrößen:

Tabelle 5-1 Am GPCG installierte Sensoren (neue Messfühler in Fettdruck dargestellt)

Messgröße	Messbereich	Sensortyp und Hersteller
Frischlufttemperatur	-50..+600 °C	Fa. Thermocoax, Hamburg
Temperatur Frischluftfeuchtefühler	0..100 °C	Hygromess Transmitter Fa. Hygrocontrol GmbH, Hanau
Frischluftfeuchtigkeit	0..100 % rel. Feuchte	
Volumenstrom	0,4..40 m/s	Flügelrad Strömungssensor ZS25GA mit ∅ 25 mm Fa. Höntzsch, Waiblingen
Absolutdruck Umgebungsluft	90.000 .. 110.000 Pa	Typ 40.4304 Fa. Jumo, Fulda
Differenzdruck Frischluftfeuchtemessstelle	0 .. 2000 Pa	Typ 604A-0 Fa Dwyer, Michigan, USA
Zulufttemperatur	-50..+600 °C	Pt 100

Messgröße	Messbereich	Sensortyp und Hersteller
Strömungswiderstand von Anströmboden und Produkt	0.. 5000 Pa	GBEL
Produkttemperatur	-50..+600 °C	Pt 100
Sprühluftdruck		
Sprühflüssigkeitsmasse	0..4000 g	PM 4000 Fa. Mettler, Greifensee, Schweiz
Druckdifferenz Produktrückhaltefilter	0..5000 Pa	GBEL
Temperatur im Abluftfeuchtesensor	0..100 °C	Hygromess Transmitter Fa. Hygrocontrol GmbH, Hanau
Abluftfeuchtigkeit	0..100 % rel. Feuchte	
Ablufttemperatur	-50..+600 °C	Pt 100
Differenzdruck Abluftfeuchtemessstelle	0 .. 2000 Pa	Typ 604A-0 Fa Dwyer, Michigan, USA
Externe Temperaturmessstelle		Fa. Rössel

Die folgende Abbildung zeigt die Einbauorte der Sensoren im Überblick.

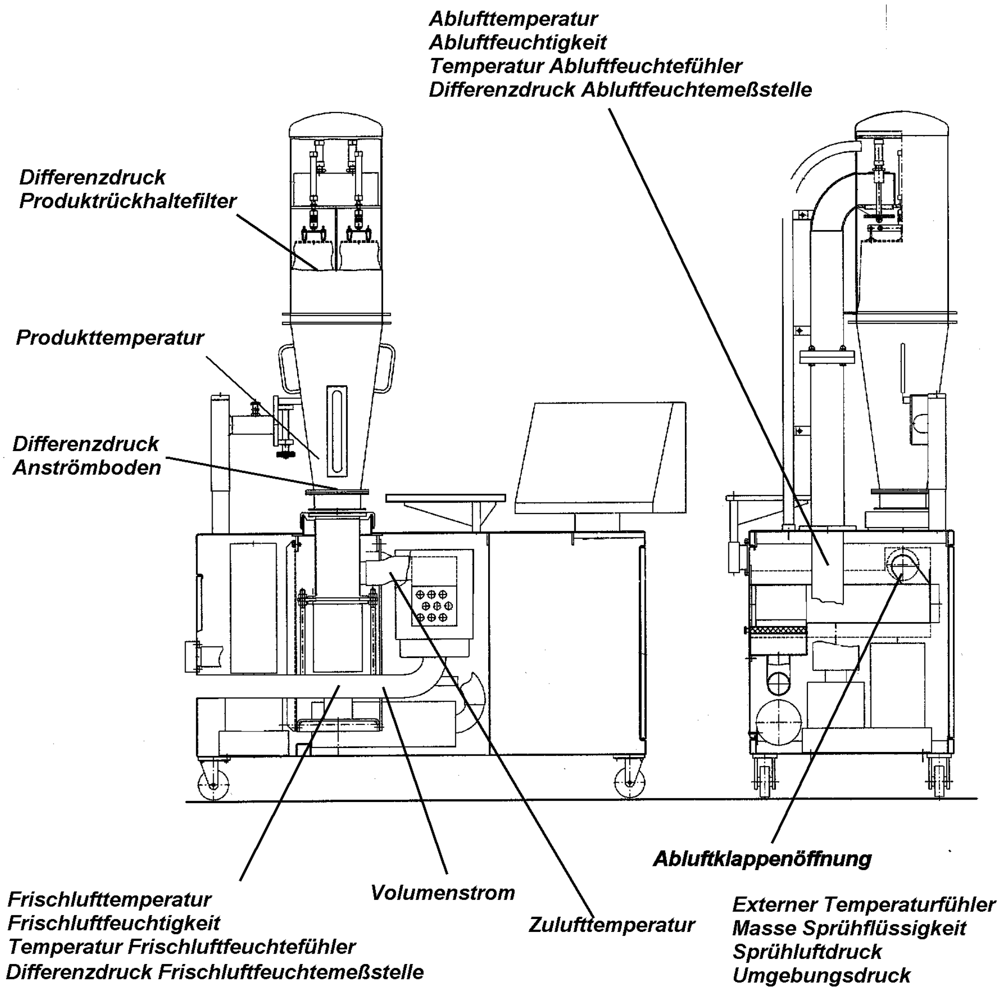


Abbildung 5-7 *Einbauorte der Sensoren am GPCG*

5.4 MESSWERTERFASSUNG UND DATENAUSWERTUNG

In Zusammenarbeit mit dem Hersteller des GPCG wurde eine zentrale Messwerterfassungssoftware in der graphischen Programmieroberfläche LabView® entwickelt. Auf einem Pentium II 166 MHz Rechner mit 80 MB Hauptspeicher und Microsoft Windows ME-Betriebssystem installiert bietet diese Software eine Echtzeitüberwachung der gesamten Anlage, wie folgende Abbildung verdeutlicht:

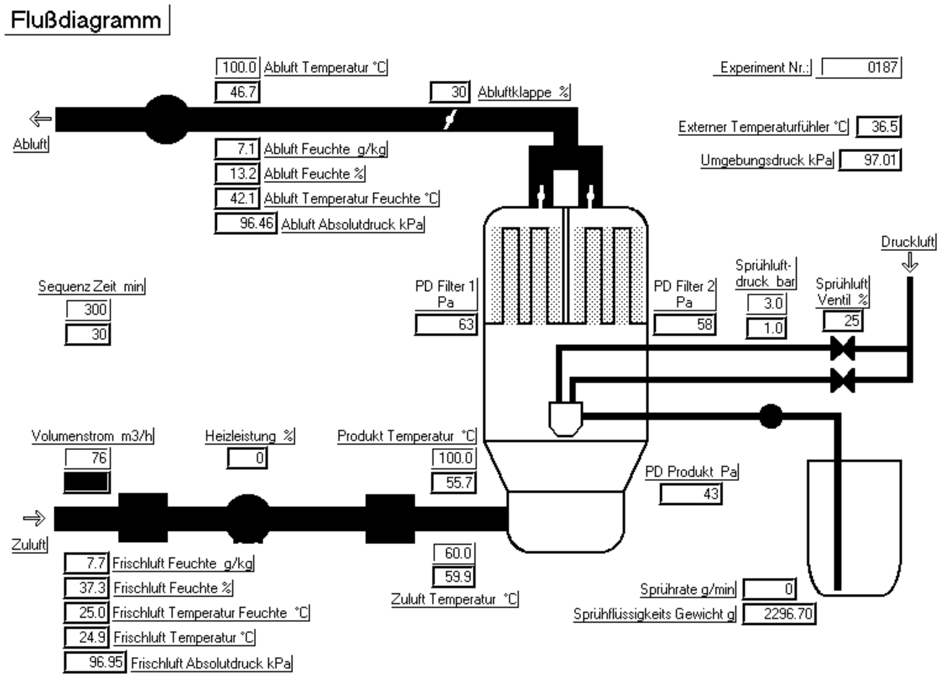


Abbildung 5-8 *Flußdiagramm in LabView®*

Sämtliche Messwerte und Betriebsparameter der Anlage werden in 5 Sekunden-Takten aufgezeichnet und am Ende eines Prozesses in ein Microsoft EXCEL 2000 Arbeitsblatt übertragen.

5.5 TEMPERATURMESSUNGEN

Sämtliche Temperaturmessungen am GPCG erfolgen mit Widerstandsthermometern: In eine biegsame, dünnwandige Mantelleitung aus Edelstahl sind niederohmige Innenleitungsdrähte aus Kupfer in gepresstem, feuerfestem Magnesiumoxid eingebettet. Temperaturänderungen führen zu Widerstandsänderungen, welche durch einen Messumformer in ein Stromstärkesignal von 4 bis 20 mA umgewandelt werden. Der gute Wärmeübergang zwischen Schutzrohr und Temperatursensor ermöglicht kurze Ansprechzeiten: Bei einer Anströmung der PT100-Sensoren mit Luft bei einer Geschwindigkeit von 3 m/s beträgt die Halbwertszeit des Temperatursignals $t_{0,5}$ = 7,2 s, die Zeit bis zum Erreichen von 90 % des Sollwerts $t_{0,9}$ = 20,5 s. Die von der Firma Thermocoax gebauten Sensoren des Typs TLA 10/10 weisen einen Durchmesser von nur 1 mm auf, die Ansprechzeit beträgt hier sogar nur $t_{0,5}$ = 0,6 s.

5.6 MESSUNG DER ZU- UND ABLUFTFEUCHTE

Um die Massenbilanzierung durchführen zu können, ist der GPCG mit speziellen Feuchtesensoren ausgestattet worden.

5.6.1 Messprinzip und Leistungsmerkmale der Feuchtesensoren

Die von der Firma HYGROCONTROL GmbH Hanau gefertigten Feuchtesensoren mit der Bezeichnung *„Hygromess Transmitter“* sind kapazitive Feuchtesensoren. Zwischen zwei Platinelektroden mit Platinanschlussdrähten befindet sich ein dielektrisches, hygroskopisches Polymer. Zur automatischen Kompensation des Temperatureinflusses auf die Bestimmung der relativen Feuchte erfolgt die Temperaturmessung mit einem in den Sensorkopf integrierten Thermoelement. Dieses Bauteil befindet sich in einem Abstand von 2 mm von der als Dielektrikum verwendeten Folie. Die beiden sonst baugleichen Feuchtesensoren unterscheiden sich lediglich im Typ des Temperaturfühlers: Der als Frischluftfeuchtesensor verwendete Typ 41 beinhaltet ein KTY-Platinwiderstands-Thermoelement, während in dem als Abluftfeuchtesensor benutzten Typ 71 ein genormter PT 1000 Temperatursensor Verwendung findet. Die Sensoren weisen folgende technischen Spezifikationen auf[148]:

Abbildung 5-9 *Hygromess Transmitter Typ 41 (Schutzkappe abg nommen)*

Messbereich relative Feuchte ... : 0 bis 100 %
Linearitätsfehler Feuchte .... : ± 0,5 % (bei Punktkalibrierung)
Wiederholgenauigkeit.............. : < 0,5 %
Auflösung .... : 0,1 %

Temperaturmessbereich........... : 0 bis 100 °C
Systemgenauigkeit................... : ± 0,5 °C
Wiederholgenauigkeit.............. : < 0,5 °C
Auflösung .... : 0,1 °C

Diese Sensoren sind speziell als Kanalsonden mit angeflanschter Elektronik konzipiert. Um einen sicheren Ein- und Ausbau sowie mechanischen Schutz vor Partikeln im Volumenstrom zu gewährleisten, sind auf die Sensorköpfe Sinterfilter aus Edelstahl aufgeschraubt. Das Material weist einen Porendurchmesser von 16 µm auf. Diese Bauweise erlaubt einen optimalen Schutz, ohne dadurch die Ansprechzeit der Sensoren stark zu beeinflussen.

5.6.2 Einbauweise der Feuchtesensoren

Der Frischluftfeuchtesensor befindet sich ca. 80 cm hinter dem Ansaugstutzen des Frischluftrohres. Er liegt damit in Strömungsrichtung gesehen, noch vor der Heizung. Der Abluftfeuchtesensor befindet sich im Abluftrohr ca. 1,5 m hinter den Rückhaltefiltern. Der GPCG kann unter extremen Bedingungen derart gefahren werden, dass die Ablufttemperatur an dieser Stelle Werte um 85 °C annimmt. Damit entstehen Temperaturdifferenzen zwischen dem Inneren des Abluftrohres und der Umgebungsluft von bis zu 60 °C. Die Sensorhalter sind aus Teflon gefertigt, um die Wärmeableitung zu minimieren. Dennoch ist die Temperatur am Sensorkopf stets niedriger als in der zu messenden Abluft. Der Feuchtesensor liefert den Messwert der relativen Feuchte im Inneren des Sinterfilters. Dieser Wert entspricht aber nicht zwangsläufig der relativen Feuchte im zu messenden Medium, da hier die Temperatur höher liegt. Der Hersteller der Sensoren empfiehlt zur Bestimmung der relativen Feuchte heißer Luft daher folgendes Vorgehen[149]: Aus den Messwerten der relativen Feuchte und der Temperatur am Sensorkopf wird zunächst der Feuchtegehalt berechnet. Mit einem zusätzlichen Temperaturfühler ist die Temperatur der heißen Luft zu messen. Aus diesem realen Temperaturwert und dem Feuchtegehalt kann dann die relative Feuchte der heißen Luft berechnet werden. Die beiden baugleichen Sensoren können zu Kalibrierzwecken leicht ausgebaut werden. Da die Anschlussleitungen eine ausreichende Länge aufweisen, können beide Sensoren auch gegeneinander vertauscht werden.

5.6.3 Kalibrierung der Feuchtesensoren

Da der Messwert der relativen Feuchte in sehr starkem Maß von der herrschenden Temperatur beeinflusst wird, kann eine Kalibrierung derartiger Messfühler bezüglich φ nun dann sinnvoll durchgeführt werden, wenn zuvor überprüft worden ist, ob die Temperaturmessung korrekt funktioniert. Um Wärmestrahlungsverluste durch das Gehäuse der Sensorelektronik auszuschließen, werden die beiden Feuchtesensoren vollständig in einer wärmeisolierende Box positioniert, die von der warmen Abluft des GPCG durchströmt wird und mit kalibrierten Referenzthermometern (Flüssigkeitsthermometer, Arbeitsbereich 0..50 °C, $^{1}/_{10}$ °C-Unterteilung) versehen ist.

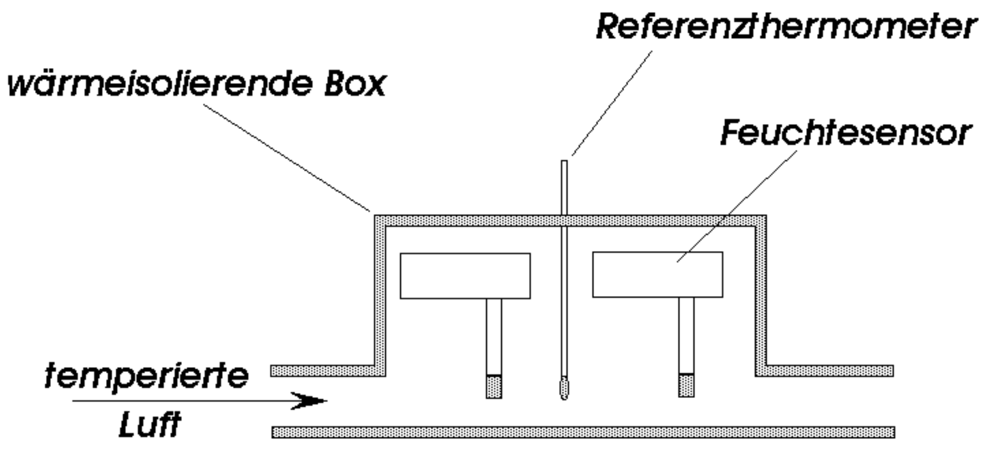


Abbildung 5-10 Versuchsaufbau zur Überprüfung der Temperaturmessung der Feuchtesensoren

Laut Hersteller der Feuchtesensoren genügt für diese Überprüfung eine Einpunktkalibrierung, da die Sensorkennlinien allesamt parallelverschobene Geraden sind[150]. Das folgende Diagramm zeigt die Messergebnisse für die Umströmung der Sensoren mit Luft von 50 °C:

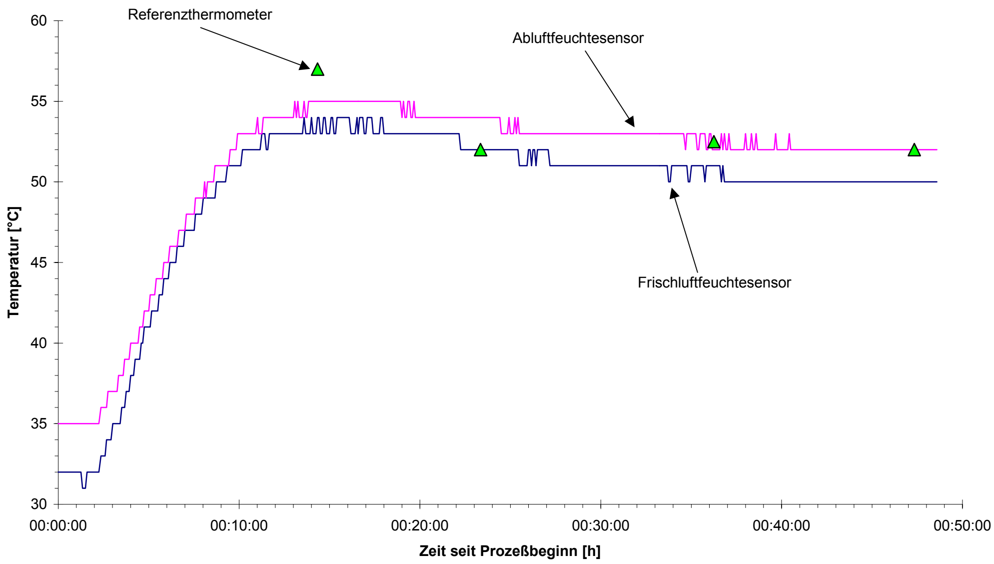


Abbildung 5-11 Ergebnis der Überprüfung der Temperaturanzeige der Feuchtesensoren

Im Mikroprozessor des Messumformers wird die erste Nachkommastelle des Temperaturmesswertes berücksichtigt. Die Messwerterfassung des GPCG hingegen rundet die Werte auf ganze Zahlen; in der Folge sind die Temperaturabweichungen hier möglicherweise größer als systemintern. Die Abweichungen werden als gerade noch zulässig bewertet.

Zur Kalibrierung der Feuchtemessung der Sensoren werden Feuchtigkeitsquellen, sogenannte **Hygrostatenflüssigkeiten,** verwendet, die bei definierter Temperatur in einem geschlossenen System Atmosphären bestimmter relativer Luftfeuchtigkeit schaffen. Die Firma Hygrocontrol hat ein Kalibrierverfahren entwickelt, bei dem Lithiumchlorid-Lösungen verschiedener Konzentration Anwendung finden. Nach dem Entfernen der Verkleidung des GPCG werden die beiden Feuchtesensoren aus ihren Aufnahmen im Zu- und

Abluftleitungssystem herausgezogen und so fixiert, dass der Sensorkopf jeweils nach unten ragt. Nach Entfernen des Sinterfilters wird auf den Sensorkopf eine spezielle Klimakammer vorsichtig aufgeschraubt. Die Salzlösungen liegen gebrauchsfertig in Ampullen vor und müssen lediglich auf ein Textilgewebe in der Klimakammer übertragen werden. Es ist darauf zu achten, dass die gesamte Kalibriervorrichtung thermisch äquilibriert ist und eine Temperatur zwischen 20 und 24 °C aufweist. Die Kalibrierung erfolgt potentiometerfrei und mikroprozessorgesteuert.

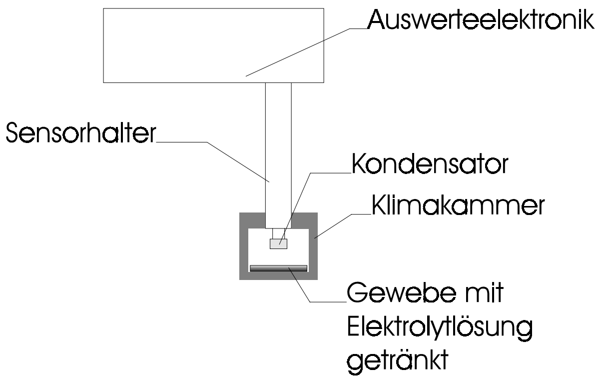


Abbildung 5-12 *Kalibrieraufsatz*

In einem ersten Schritt wird die Sensorkennlinie durch eine Zweipunkt-Kalibrierung bei 0 % und 80 % relativer Feuchtigkeit auf eine Geradenkennlinie eingestellt. Hieraus ergibt sich ein verbleibender Linearitätsfehler von maximal 1,5 %. In einem zweiten Schritt wird eine Punktkalibrierung bei den Stützpunkten 10, 20, 35, 50, 65 und 95 % relativer Feuchtigkeit durchgeführt. Im späteren Messmodus berechnet die Digitalelektronik die Messergebnisse mit einem Interpolationsverfahren. Hierdurch ist ein systematischer Fehler von 0,5 % erzielbar.
Die beschriebene Kalibrierung der Feuchtesensoren hat den Nachteil, dass die Überprüfung des Sensorverhaltens nur bei der Temperatur von 22 °C erfolgt. Da der Arbeitsbereich der Sensorik aber das Intervall von 20 °C bis 80 °C umfasst, wurde eine eigene Kalibriermethode entwickelt. Der Boden der Klimakammer wird jeweils mit gesättigten Salzlösungen von Lithiumchlorid, Magnesiumchlorid, Magnesiumnitrat und Kaliumchlorid mit einem Zusatz der gleichen Masse des reinen Salzes bedeckt. Die große Menge an Bodensatz ist erforderlich, da sich die Salze bei erhöhter Temperatur besser lösen und nur so der Sättigungszustand der Lösung während des gesamten Versuchs gewährleistet ist. Es ist darauf zu achten, dass sämtliche Kristalle von der gesättigten Lösung bedeckt sind, da anderenfalls die kristallinen Partikeln Wasser aus der Atmosphäre absorbieren und damit das Mikroklima stören würden. Ferner ist dafür Sorge zu tragen, dass der Sensorkopf nicht in Kontakt mit den Salzlösungen kommt, da Auskristallisationen auf dem Dielektrikum zu irreversiblen Schäden des Sensors führen.
Nach Fixierung des Sensors wird die gesamte Klimakammer in einen mit PEG gefüllten Lauda®-Thermostaten eingetaucht. Nach Starten der Messwerterfassung wird die PEG-Bad-Temperatur sukzessive von 20 °C beginnend in 10 °-

Schritten bis auf 80 °C erhöht. Das Aufheizen auf die nächste Temperaturstufe erfolgt erst dann, wenn die Temperatur am Feuchtesensor sowie die gemessene relative Feuchte über 10 Minuten einen konstanten Wert aufweisen. Die folgende Abbildung zeigt das Versuchsergebnis für die Kalibrierung des Abluftfeuchtesensors mit Lithiumchlorid:

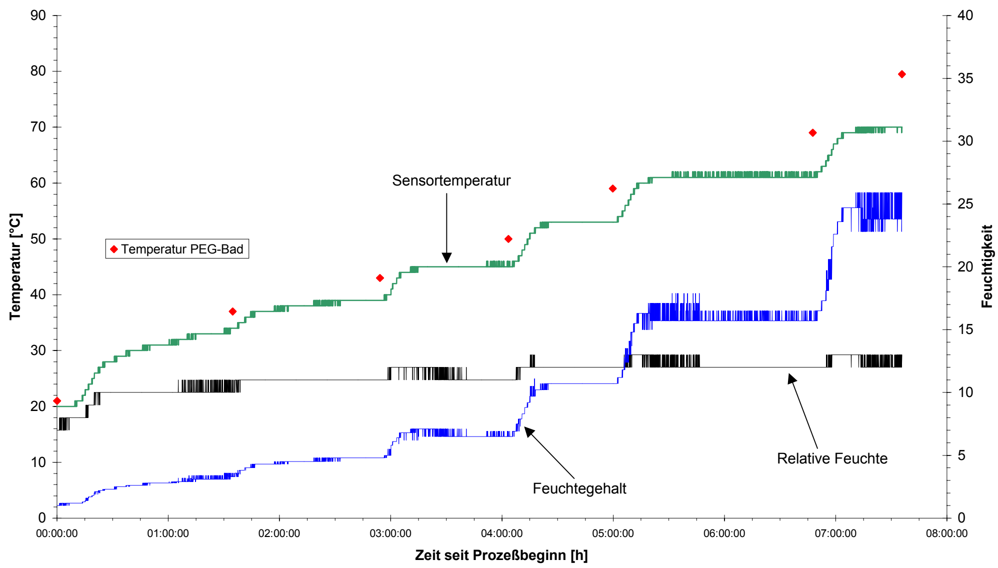


Abbildung 5-13 *Temperaturverlauf der Kalibrierung der Feuchtesensoren*

Wie die Versuchsbeobachtung zeigt, dauert die Äquilibrierung für jede Stufe mindestens 20 Minuten. Bei höheren Temperaturen liegt die PEG-Bad-Temperatur bis zu 10 °C über dem im Inneren der Klimakammer gemessenen Wert; dies liegt in der Wärmeleitung des Sensors begründet.

Um die real vorliegenden relativen Feuchten zu ermitteln, werden der Literatur[151] für die vier verwendeten gesättigten Salzlösungen diskrete Werte entnommen und mit einer linearen bzw. polynomischen Regression eine Gleichung zur Berechnung von φ-Werten bei beliebigen Temperaturen erstellt.

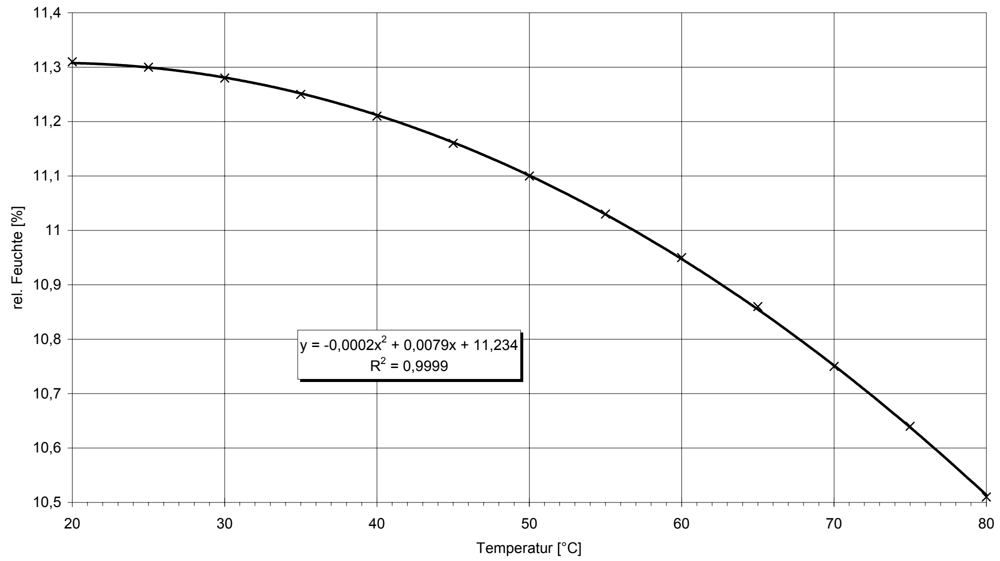


Abbildung 5-14 *Relative Feuchte über gesättigter LiCl-Lösung*

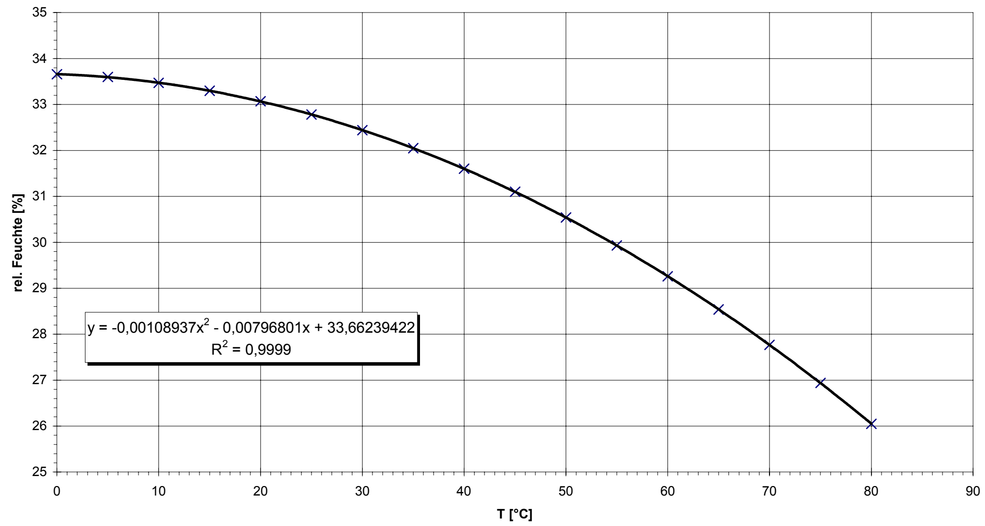


Abbildung 5-15 *Relative Feuchte über gesättigter Magnesiumchlorid-Lösung*

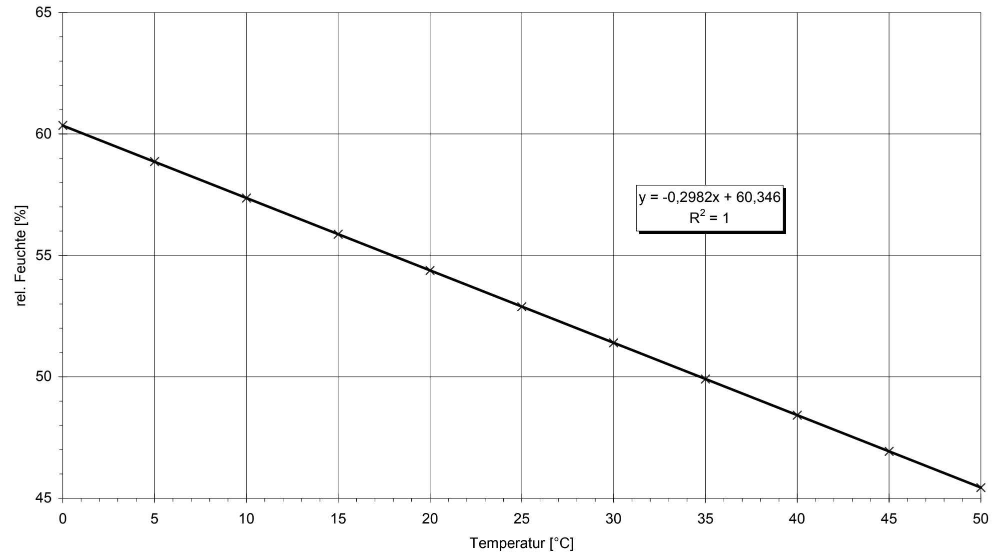


Abbildung 5-16 *Relative Feuchte über gesättigter Magnesiumnitrat-Lösung*

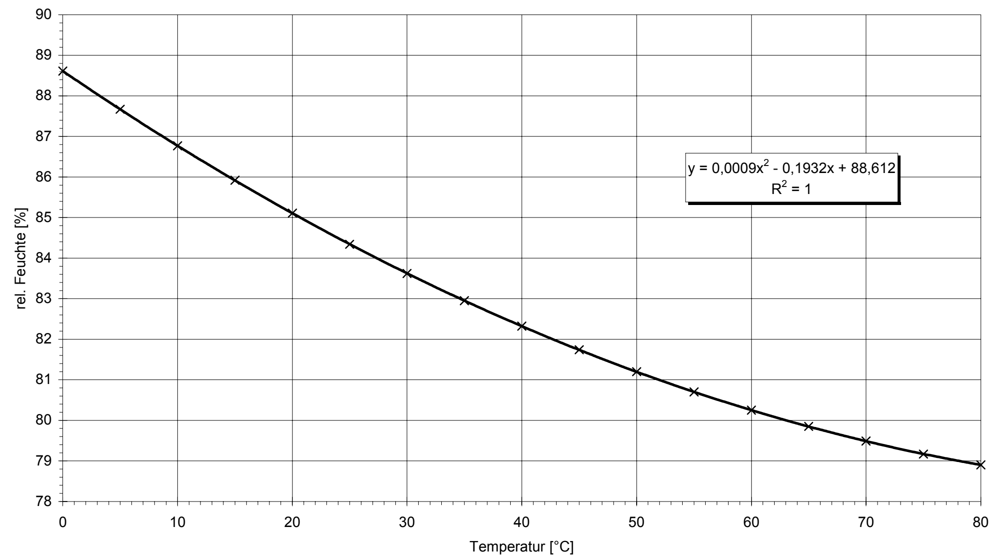


Abbildung 5-17 *Relative Feuchtigkeit über gesättigter KCl-Lösung*

Durch Befüllen der Klimakammer mit deïonisiertem Wasser wird ein zusätzlicher Kalibrierstandard für 100 % relative Luftfeuchtigkeit verwendet.

Da die Auswerteelektronik der Feuchtesensoren nicht für die Eingabe von Temperatur-Kalibrierdaten ausgelegt ist, muss die Umrechnung in die wahren relativen Feuchtigkeiten extern erfolgen. Für jeden durch Temperatur und Feuchtigkeit definierten Kalibrierpunkt wird ein Korrekturfaktor k´ berechnet gemäß:

$$k' = \frac{wahrer\,Wert}{Messwert} \qquad (5.1)$$

Es gilt damit:

$$\varphi_{real} = k'_{\vartheta_{Messwert}, \varphi_{Messwert}} \cdot \varphi_{Messwert} \qquad (5.2)$$

φ_{real} *Wahre relative Feuchte [%]*
k´ *Korrekturfaktor [-]*
φ_{real} *Relative Feuchte laut Sensoranzeige [%]*

Die Kalibrierung des Abluftfeuchtesensors liefert folgende Rohdaten:

Tabelle 5-2

Gesättigte Lithiumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
22	7	11,311	161,59
24	6	11,3084	188,47
24,5	7	11,3075	161,54
29	7,5	11,2949	150,60
30	7	11,291	161,30
37,5	7,5	11,249	149,99
57,5	8	11,027	137,84
69	9	10,8269	120,30

Tabelle 5-3

Gesättigte Magnesiumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
24	31,5	32,84	104,25
29	32,5	32,51	100,03
39	31,5	31,69	100,60
45,5	31,3	31,04	99,17
54	31	30,05	96,94
61,5	29,5	29,05	98,47

Tabelle 5-4

Gesättigte Magnesiumnitrat-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
19,5	50,5	54,5	107,92
29	51	51,7	101,37
37,5	49,3	49,16	99,72
45,5	50	46,77	93,54
53,5	51	44,39	87,04

Tabelle 5-5

Gesättigte Kaliumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
21	84,6	84,95	100,41
28,5	83	83,83	101
36	85	82,82	97,44
45	84	81,74	97,31
53,5	82	80,85	98,60
62	79	80,09	101,38

Tabelle 5-6

Wasser			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
19	93	100	107,53

Die folgende Abbildung zeigt die Rohdaten dieser Versuchsreihe in einer dreidimensionalen Darstellung. Dabei wird der Korrekturfaktor k´ in Abhängigkeit der Sensortemperatur sowie der gemessenen relativen Luftfeuchtigkeit dargestellt:

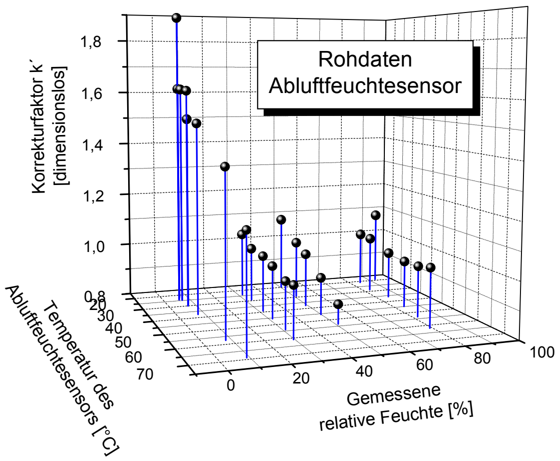


Abbildung 5-18 *Rohdaten Abluftfeuchtesensor*

Um eine Funktion zu ermitteln, die aus den gemessenen Werten relativer Feuchte und Temperatur den Korrekturwert k´ liefert, wird die Response-Surface-Technik angewendet. Mit Hilfe der Statistiksoftware SAS 8.01 (SAS Institute Inc., Cary, NC, USA) werden die Response-Surfaces nacheinander für ein lineares, für ein quadratisches sowie ein gemischt-quadratisches Model berechnet*.

* *Siehe Programmlisting im Anhang*

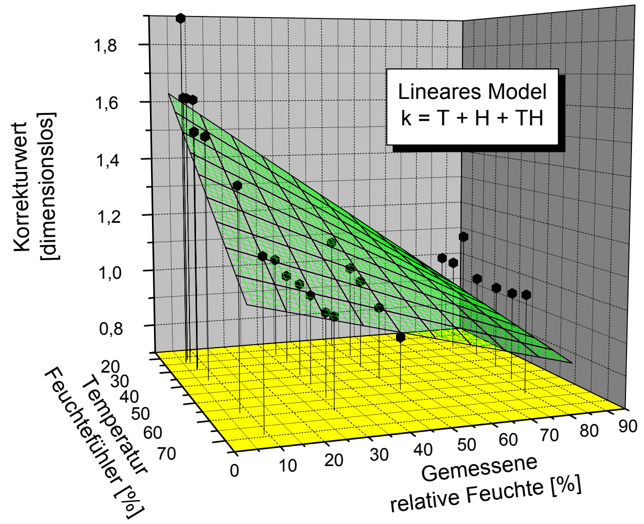


Abbildung 5-19 *Lineares Moedel* *$R^2 = 0,6381$*

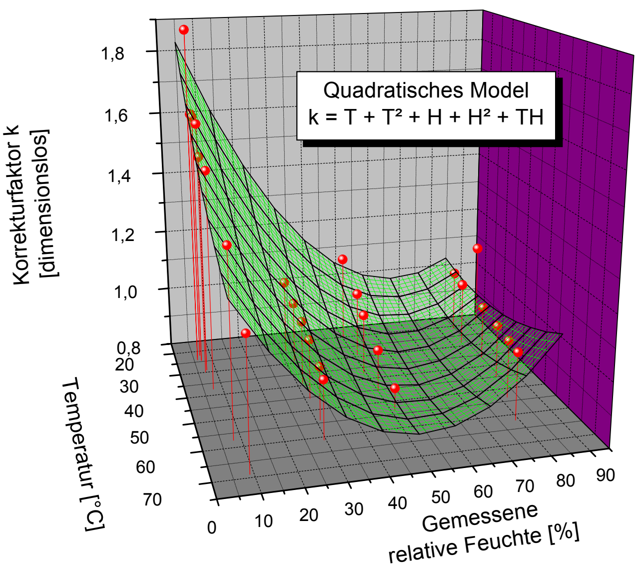


Abbildung 5-20 *Quadratisches Model* *$R^2 = 0,9400$*

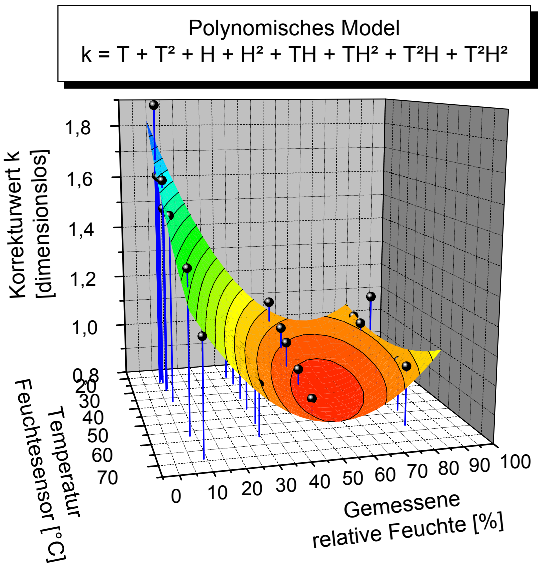


Abbildung 5-21 *Polynomisches Model $R^2 = 0{,}9403$*

Abbildung 4-19 zeigt auf, dass das lineare Model die Abhängigkeit des Korrekturfaktors k´ von φ und ϑ nicht ausreichend genau beschreibt; dies wird auch im Korrelationskoeffizienten deutlich. Je komplexer das Model gewählt wird, desto präziser kann die Response-Surface den Stützstellen angepasst werden. Die mit dem quadratischen Model approximierte Funktion k´=f(φ; ϑ) ist den Versuchspunkten sehr gut angepasst, der Korrelationskoeffizient ist deutlich besser als beim linearen Model. Die Verwendung des polynomischen Models birgt in diesem Fall keine weitere Verbesserung der Response-Surface: der Korrelationskoeffizient wird nicht signifikant besser. Die gemischt quadratischen Terme werden folglich vernachlässigt. Die quadratische Korrekturfunktion für den Abluftfeuchtesensor lautet damit:

$$k' = -0{,}017316265 \cdot \vartheta + 8{,}5185 \cdot 10^{-5} \cdot \vartheta^2 - 0{,}03127234 \cdot \varphi + 2{,}13268 \cdot 10^{-4} \cdot \varphi^2 + 1{,}38734 \cdot 10^{-4} \cdot \varphi \cdot \vartheta + 2{,}2062 \tag{5.3}$$

k´ *Korrekturfaktor [-]*
ϑ *Vom Abluftfeuchtesensor gemessene Temperatur[°C]*
φ *Relative Feuchte laut Sensoranzeige [%]*

Die Projektion der mit dem quadratischen Model konstruierten Response-Surface in die x,y-Ebene erleichtert die Interpretation:

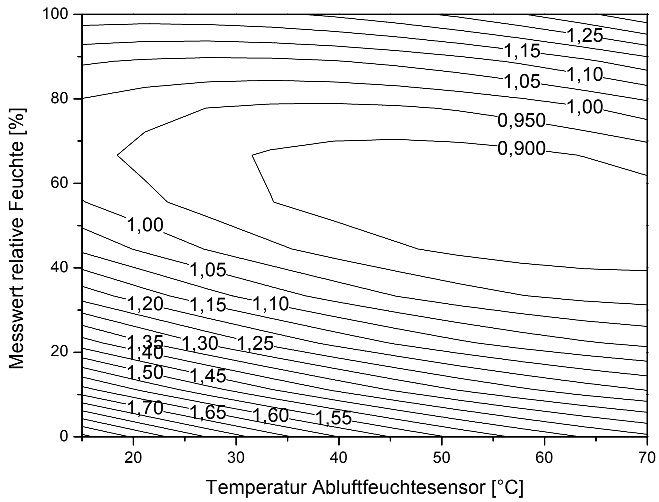


Abbildung 5-22 *Korrekturwert k´ für den Abluftfeuchtesensor (quadratisches Model)*

Der Abluftfeuchtesensor liefert im Bereich um 60 % relativer Feuchte nahezu wahre Werte; in allen anderen Arbeitsbereichen zeigt dieser Sensor eine zu geringe Feuchtigkeit an.

Da die Frischluft in einem kleineren Temperaturbereich als die Abluft variiert, erfolgt die Kalibrierung dieses Sensors bei sonst unveränderter Vorgehensweise nur im Intervall 15 °C bis 40 °C. Die folgenden Tabellen zeigen die Ergebnisse:

Tabelle 5-7

Gesättigte Lithiumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
22	9	11,311	125,6778
27	8,5	11,3015	132,9588
35	9	11,2655	125,1722
22	9	11,311	125,6778

Tabelle 5-8

Gesättigte Magnesiumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
16	31,3	33,25602734	106,2493
18	33	33,16601416	100,5031
21	33,5	33,01465384	98,5512
30	34,5	32,44292092	94,0375
40	35	31,60068182	90,2877

Tabelle 5-9

Gesättigte Magnesiumnitrat-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
19,5	49	54,5311	111,2880
26	49	52,5928	107,3322
33	48	50,5054	105,2196
42	47	47,8216	101,7481

Tabelle 5-10

Gesättigte Kaliumchlorid-Lösung			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
19	82	85,2661	103,9830
29	87	83,7661	96,2829
40	87	82,324	94,6253

Tabelle 5-11

Wasser			
Temperatur [°C]	Gemessene relative Feuchte [%]	Reale Effektive Feuchte [%]	Abweichung [%]
22	94	100	1,0638

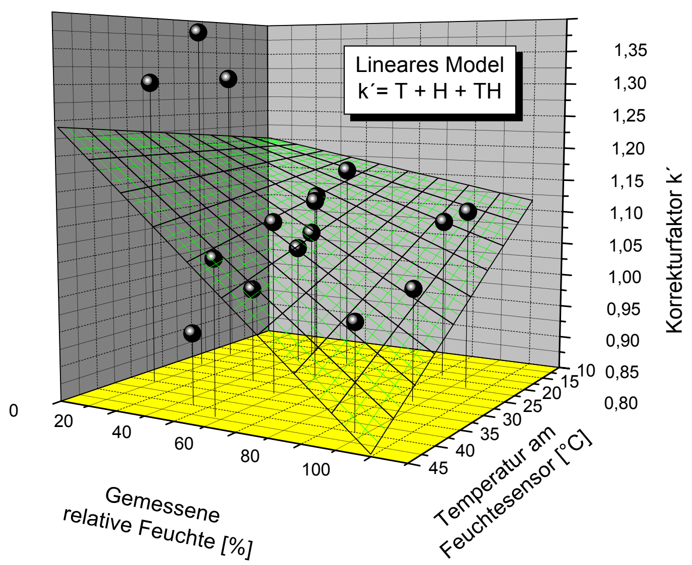


Abbildung 5-23 *Lineares Model der Korrekturfunktion des Frischluftfeuchtesensors* $R^2 = 0{,}3757$

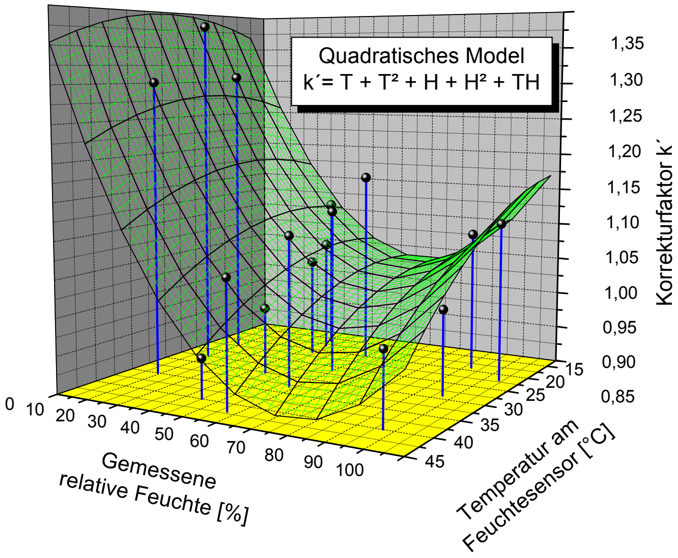


Abbildung 5-24 *Quadratisches Model der Korrekturfunktion des Frischluftfeuchtesensors* $R^2 = 0{,}6868$

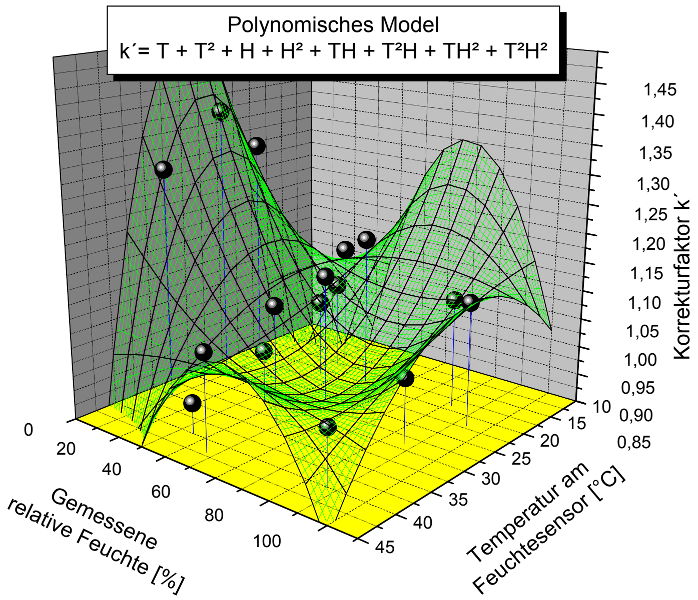


Abbildung 5-25 *Polynomisches Model der Korrekturfunktion des Frischluftfeuchtesensosr* $R^2 = 0{,}7649$

Aufgrund des schlechten Korrelationskoeffizienten scheidet auch hier das lineare Model zur Beschreibung der Korrekturfunktion des Frischluftfeuchtesensors aus. Begründet in der höheren Komplexität des polynomischen Models ist die Anpassung der Response-Surface an die Stützstellen hierbei besser als bei dem quadratischen Model, was sich dementsprechend in einem besseren Korrelationskoeffizienten manifestiert. Der Verlauf dieser komplizierten Ausgleichsfläche ist jedoch physikalisch nicht mehr interpretierbar.

Für die Beschreibung der Korrekturfunktion des Frischluftfeuchtesensors wird daher das quadratische Model zugrunde gelegt:

$$k' = 9{,}43 \cdot 10^{-3} \cdot \vartheta - 1{,}6487 \cdot 10^{-4} \cdot \vartheta^2 \\ - 9{,}911551 \cdot 10^{-3} \cdot \varphi + 8{,}7676 \cdot 10^{-5} \cdot \varphi^2 \\ - 5{,}3727 \cdot 10^{-5} \cdot \varphi \cdot \vartheta + 1{,}2127 \qquad (5.4)$$

k´ *Korrekturfaktor [-]*
ϑ *Vom Frischluftfeuchtesensor gemessene Temperatur [°C]*
φ *Relative Feuchte laut Sensoranzeige [%]*

Die Projektion dieser Fläche auf die x,y-Ebene verdeutlicht den Zusammenhang:

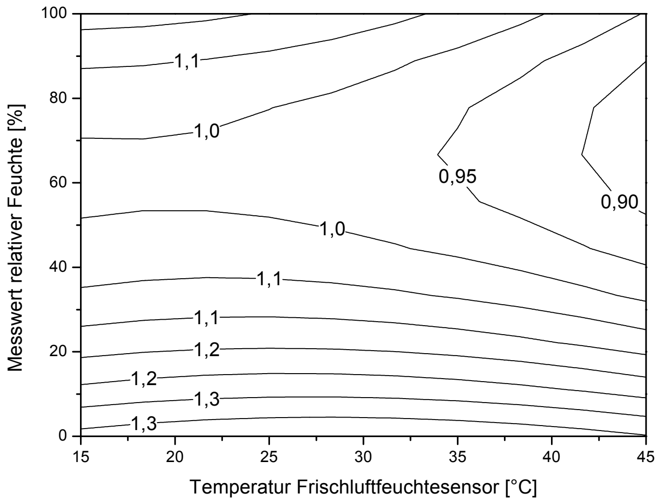


Abbildung 5-26 *Quadratisches Model für die Korrektur des Frischluftfeuchtesensors*

Innerhalb eines Bereichs von ca. 50 bis 70 % relativer Feuchte liefert der Frischluftfeuchtesensor die wahren Werte; beim Übergang zu niedrigeren relativen Feuchten werden hingegen viel zu geringe Feuchten angezeigt: der Korrekturwert k´ nimmt dementsprechend zu.

5.6.4 Basislinienstabilität

Eine stabile Basislinie des Feuchtemesssignals ist Voraussetzung für die Erstellung einer Massenbilanzierung. Um eventuelle Sensordrifts zu quantifizieren, wird exemplarisch der Abluftfeuchtesensor mit einer mit gesättigter Lithiumchloridlösung befüllten Klimakammer versehen und bei 24 °C für 2,5 h im PEG-Bad temperiert. Die lineare Regression der Feuchtigkeitsmesswerte in Abhängigkeit von der Zeit liefert einen Sensordrift von 0,06 %/h. Dieser Wert ist so gering, dass er nicht für die weiteren Berechnungen berücksichtigt werden muss.

5.6.5 Zeitverhalten der Feuchtesensoren

Ändert sich die Luftfeuchtigkeit eines Messobjekts, so folgt die Anzeige des Feuchtigkeitssensors nicht gleichzeitig, sondern mit einer gewissen Verzögerung. Die Art und Weise, nach der die Anzeige des Sensors einem zeitlich veränderlichen Messwert folgt, wird als **Zeitverhalten** oder auch als *„Ansprechzeit“* bezeichnet. Das Reaktionsverhalten eines Feuchtigkeitssensors auf die Änderung der Luftfeuchtigkeit wird mit einer Übergangsfunktion beschrieben: Es wird der relative Verlauf der Feuchtigkeitsanzeige nach einer sprunghaften Änderung der Luftfeuchtigkeit in Abhängigkeit von der Zeit notiert. Anhand dieser Funktion werden Kennwerte wie die Zeitkonstante, die Halbwertszeit oder die 9/10-Wertzeit ermittelt[152]. Eine direkte Messung der Ansprechzeit ist nicht ohne sehr großen apparativen Aufwand möglich, da hierzu experimentell ein sprunghafter Wechsel der Feuchtebedingungen der Luft realisiert werden müßte. Die beiden folgenden Abbildungen zeigen Messergebnisse des Herstellers mit den in dieser Arbeit verwendeten Feuchtesensoren[153]: Die Anströmung des Sensors erfolgte mit einer Strömungsgeschwindigkeit von 1 m/s:

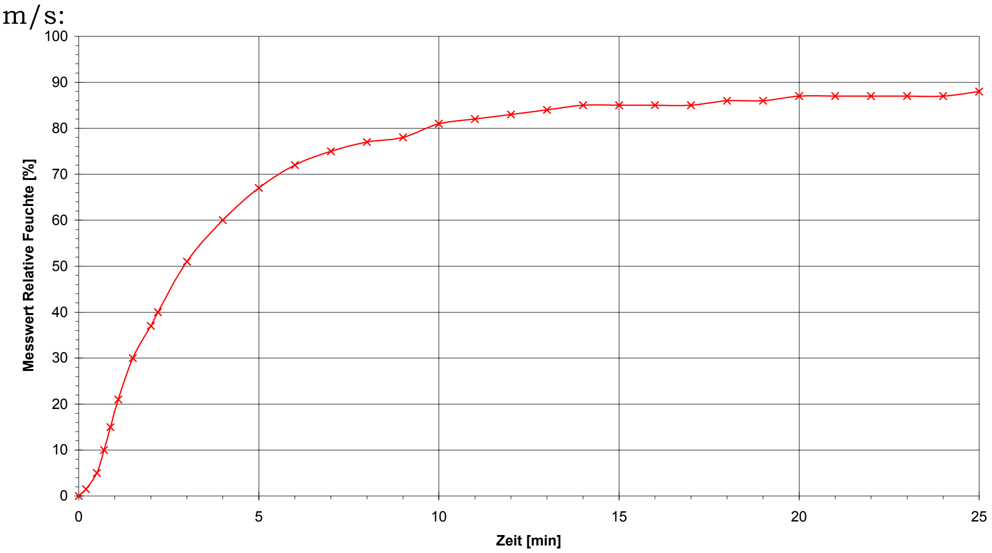


Abbildung 5-27 *Sprungfunktion 0 % auf 90 % relativer Feuchte*

Die **Halbwertszeit** $t_{0,5}$ ist als diejenige Zeitspanne definiert, in der eine abfallende physikalische Größe auf die Hälfte ihres Anfangswertes abgesunken ist. Diesem Diagramm wird bei einem Ordinatenwert von 45 % eine Halbwertszeit von $t_{0,5}$ = 2,5 min entnommen.

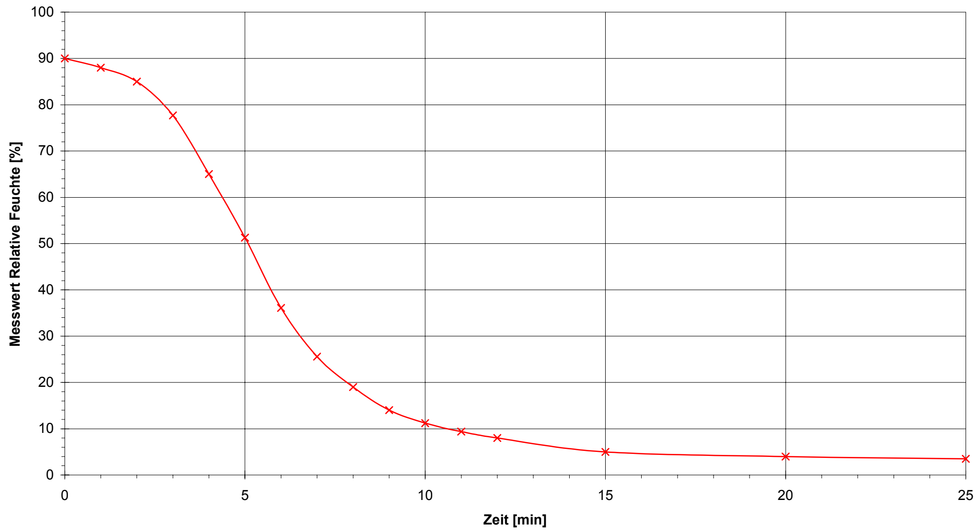


Abbildung 5-28 *Sprungfunktion 90 % auf 0 % relativer Feuchte (Anströmung mit 1 m/s)*

Das Zeitverhalten der Feuchtesensoren beim Übergang zu niedrigeren relativen Luftfeuchtigkeiten ist schlechter als das bei dem zuvor behandelten Fall, was in einer Halbwertszeit von $t_{0,5}$ = 5,5 min deutlich wird. Die Ursache hierfür wird in dem Diffusionsvorgang gesehen. Aus diesem Grund dauert auch das Kalibrieren der Feuchtesensoren mit dem Kalibrierstandard 0 % relativer Luftfeuchtigkeit mindestens eine Stunde. Der Wendepunkt in der Kurve in Abbildung 4-25 verdeutlicht, dass es sich hier nicht um einen exponentiellen Zusammenhang handelt. Je höher die Anströmgeschwindigkeit ist, desto schneller erfolgt die Äquilibrierung des Feuchtesensors; und somit verringert sich die Reaktionszeit. Die Anströmgeschwindigkeit hat jedoch keinen Einfluß auf die Anzeige des Endwertes. Für die quantitative Beschreibung der Masse an Wasser im GPCG ist eine möglichst kurze Ansprechzeit der Feuchtesensoren erforderlich. Ihre Reaktionszeit wird in hohem Maße von der Beschaffenheit des Filtermaterials des Sensorkopfes beeinflusst. Aus den hier verwendeten Edelstahlfiltern resultieren kürzere Ansprechzeiten als bei den sonst üblichen Teflon-Sinterfiltern zu erwarten sind. Die Ansprechzeit eines kapazitiven Feuchtesensors wird des weiteren von der Stärke der Platinschicht, die auf das Dielektrikum aufgetragen ist, beeinflusst: Da das zu registrierende Wasser durch diese Schicht hindurchdiffundieren muss, führen dünnere Platinschichtdicken zu schnelleren Reaktionszeiten. Die Dicke der Platinschicht beträgt bei den hier verwendeten Sensoren ca. 30 nm auf jeder Seite des Dielektrikums. Zwar sind im Handel inzwischen auch Sensoren mit einer Schichtdicke von ca. 15 nm verfügbar, die ein bis zu 5-fach schnelleres Ansprechverhalten aufweisen, als Nachteil aber eine unvertretbar hohe Sensordrift zeigen (fehlende Basislinienstabilität).[154]

5.6.6 Vergleichsmessungen mittels akustischem Feuchtesensor

Um zu untersuchen, ob das Zeitverhalten der verwendeten Feuchtesensorik ausreichend für das vorliegende Messproblem ist, werden im dynamischen Einsatz Vergleichsmessungen mit Sensoren durchgeführt, die extrem kurze

Ansprechzeiten aufweisen. Zu diesem Zweck wird ein von ZIPSER an der Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH) entwickelter akustischer Feuchtesensor verwendet. Die Sensorsignale werden durch fluidisch-akustische Oszillatoren generiert. Die Frequenz f ist der Träger der Messinformation. Temperatur- und Betriebsdruckschwankungen sowie Änderungen der Oszillatorgeometrie infolge Kontamination beeinflussen die Oszillatorfrequenz f. Zur Kompensation dieser Einflüsse werden parallel ein Mess- und ein Referenzoszillator betrieben. Das Verhältnis dieser beiden Frequenzen ist unabhängig von den zuvor genannten Einflüssen und enthält nur die Feuchteinformation. Ein Mikrocontroller in der Sensorelektronik führt eine Periodendauermessung dieser Frequenzen durch. Der Messwert ist ein Mittelwert, der über eine Periodenzahl zwischen 50 und 15728640 gebildet wird. Dies entspricht z.B. bei einer Frequenz von 2 kHz einem Messzeitbereich von 25 ms bis zu 131 min. Neben dem Feuchtegehalt wird aus der Oszillatorfrequenz f die Temperatur des Messgases berechnet. Der akustische Feuchtesensor weist folgende Spezifikationen auf:

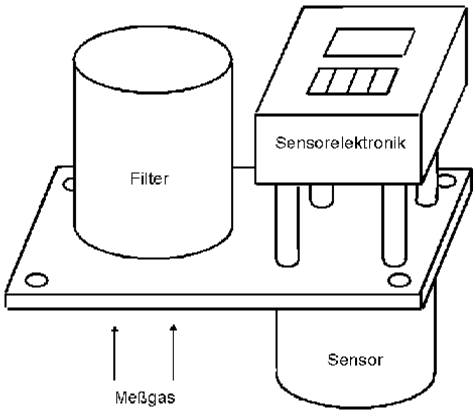


Abbildung 5-29 *Aufbau des akustischen Feuchtesensors*

- Arbeitsbereich spezifische Luftfeuchtigkeit χ_f = 2..1000 g/kg
- Auflösung χ_f = 1 g/kg
- Arbeitsbereich Temperatur T = 20 ... 400 °C (Optimum bei 250 °C)
- Auflösung T = 1 °C
- Messgenauigkeit 3 %
- Ansprechzeit $t_{90} \leq 0{,}1$ Sekunde

Die Sensorelektronik stellt über eine emulierte RS 232-Schnittstelle die Messwerte für die spezifische Luftfeuchtigkeit und die Sensortemperatur zur Verfügung. Mit Turbo Pascal 7.0 (Borland International Inc.) wurde ein Programm zur Messwerterfassung geschrieben[155], welches die Messwerte alle 0,1 s einliest, die spezifische Luftfeuchtigkeit in Feuchtegehalte umrechnet und jeweils den arithmetischen Mittelwert aus 50 Werten in eine Tabelle schreibt*. Der Prototyp eines solchen akustischen Feuchtesensors wird am Abluftgräting des GPCG in einer aus Plexiglas gefertigten Messkammer mit den Innenmaßen 10 x 10 x 30 cm installiert.

* *Siehe Programmlisting im Anhang*

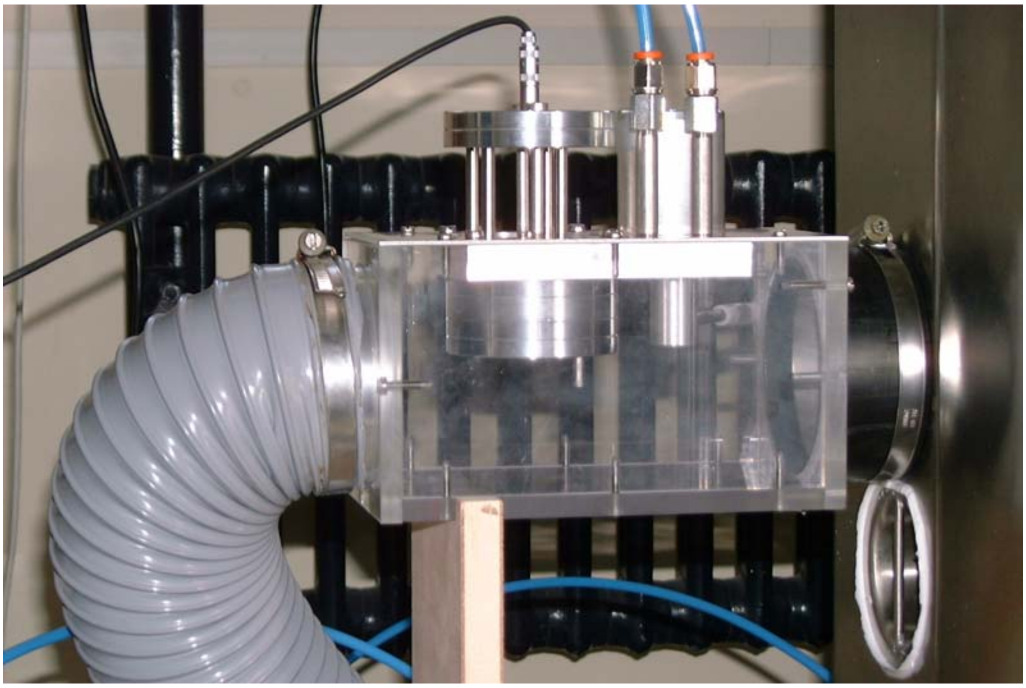


Abbildung 5-30 *Einbau des akustischen Feuchtesensors in den Abluftkanal des GPCG*

Durch diesen Versuchsaufbau ist sichergestellt, dass der gesamte Sensorkopf thermisch äquilibriert ist. In der Messzelle kann ein Temperatursensor fixiert werden, um die Ablufttemperatur unmittelbar am Feuchtesensor zu messen. Durch das Plexiglas könnte eine eventuelle Wasserkondensation im Abluftsystem visuell erkannt werden. Da der Sensor für Überdruckbedingungen ausgelegt ist, wird der Abluftleitungsschlauch vom hausinternen Abluftsystem, welches mit Unterdruck arbeitet, getrennt. Allein aufgrund des Strömungswiderstandes in dem rauen Abluftleitungsschlauch ist sichergestellt, dass in der Plexiglasmesszelle ein Überdruck herrscht. Um ein Aufheizen und Befeuchten der Raumluft während eines Granulationsprozesses zu verhindern, wird der Abluftleitungsschlauch aus dem Raum herausgeführt. Da dieses Messprinzip kalibrierungsfrei arbeitet, ist laut Sensorhersteller eine Nullpunktbestimmung nicht erforderlich. In einer Reihe von Vorversuchen wird jedoch überprüft, wie robust die Messung mit dem akustischen Feuchtesensor gegenüber Änderungen des Volumenstroms sowie der Ablufttemperatur sind.

Zur Bestimmung des Ansprechverhaltens der Feuchtesensoren wird in den leeren, thermisch äquilibrierten GPCG Wasser mit unterkritischer bis maximal kritischer Sprührate eingesprüht, so dass die Änderung des Abluftfeuchtegehalts so schnell wie möglich erfolgt und nicht durch Kondensations- und Verdampfungsprozesse an den Gefäßwänden verzögert wird.

5.6.7 Sonstige Vergleichsmessungen der Luftfeuchtigkeit

Um zusätzliche Referenzwerte der Raumluftfeuchtigkeit zu erhalten, werden die Messwerte einer Funkwetterstation WMR 918H (Firma HUGER Electronics GmbH, Villingen, Deutschland) herangezogen. Die Sendeeinheit wird unmittelbar unterhalb des Ansauggrätings des GPCG positioniert. Die Mess-

einheit ist unmittelbar zuvor vom Hersteller kalibriert worden. Die Messdaten Temperatur, Taupunkttemperatur und barometrischer Luftdruck werden manuell in die LabView-Messwerterfassung eingetragen. Referenzwerte für die Außenluftfeuchtigkeit werden ferner von der Zentrale des Deutschen Wetterdienstes in Offenbach[158] sowie von der GSG Geologie-Service GmbH[156], Würzburg eingeholt. Beide Dienstleister verfügen über eigene Wetterstationen in Würzburg. Die folgende Abbildung zeigt die Messergebnisse der Wetterstation des GSG:

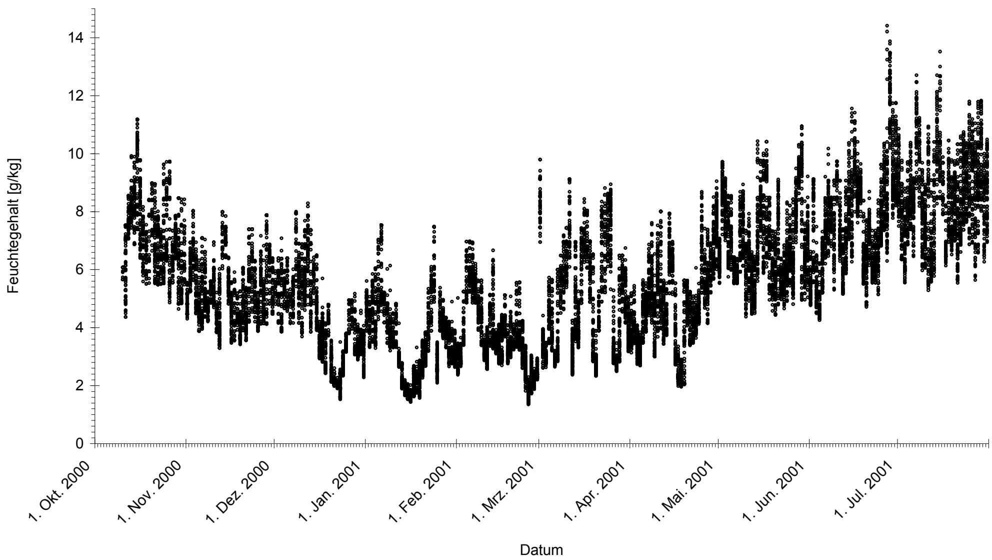


Abbildung 5-31 *Feuchtegehalt in Würzburg (260 über NN) Oktober 2000 – Juli 2001*[156]

Diese Abbildung verdeutlicht die jahreszeitlichen Schwankungen: die niedrigsten Werte des Feuchtegehalts liegen im Januar bei 1 g/kg, die höchsten im Juli mit 14,4 g/kg.

5.6.8 Messung der Feuchtigkeit an verschiedenen Positionen im Rohrquerschnitt

Wie aus Untersuchungen von LUY[52] hervorgeht, differieren die Gastemperaturen im Rohrquerschnitt zum Teil um mehrere Grad Celsius. Dieser Sachverhalt liegt vermutlich in der guten Wärmeleitung des Rohrmaterials Edelstahl begründet: Bei sehr hohen Fluidtemperaturen wird die Wärme nach außen abgestrahlt, während bei niedrigen Betriebstemperaturen eine Aufheizung der Rohrwand infolge des Temperaturanstiegs in dem Gehäuse des GPCG verursacht wird. Da dieser Temperaturunterschied Auswirkungen auf die relative Luftfeuchtigkeit haben sollte, wurde der Einfluß der Positionierung des Feuchtesensors im Rohrquerschnitt auf diese Messgröße hin untersucht. Der Aufnahmeflansch des Feuchtesensors erlaubt es, nach Lösen einer Fixierungsschraube den Sensorkopf im Rohrquerschnitt zu verschieben.

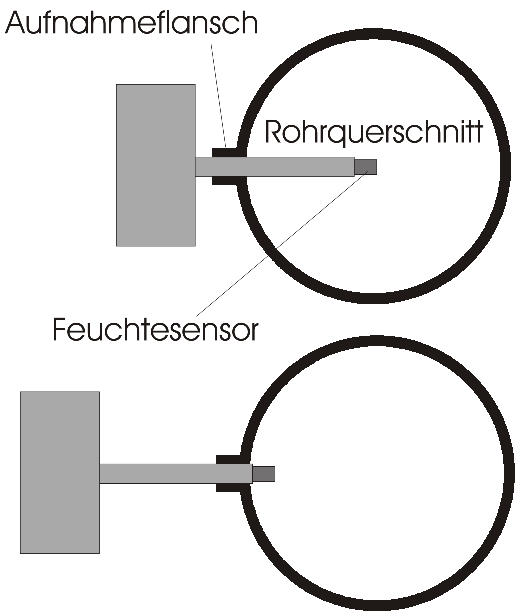


Abbildung 5-32 *Positionierung des Feuchtesensors im Querschnitt des Abluftkanals*

Der GPCG wurde unter konstanten Bedingungen gefahren und dabei der Abluftfeuchtesensor in drei unterschiedlichen Positionen fixiert.

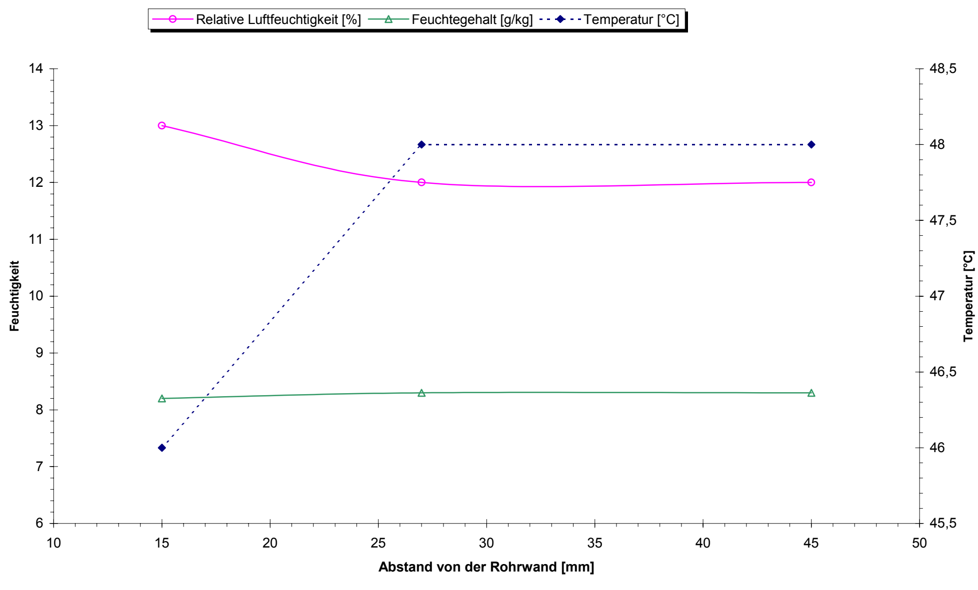


Abbildung 5-33 *Ergebnisse der Feuchtemessung an verschiedenen Positionen im Rohrquerschnitt*

Wie obige Abbildung zeigt, fällt die Temperatur von der Rohrmitte zur Wand hin ab, was in der Wärmeleitfähigkeit des Rohrmaterials begründet liegt. Infolgedessen steigt die relative Luftfeuchtigkeit zur Rohrwand hin an. Die Umrechnung in Feuchtigkeitsgehalte führt jedoch zu konstanten Werten. Da in die Massenbilanzierung nur der letztgenannte Parameter eingeht, ist die Positionierung des Feuchtesensors folglich unkritisch.

5.7 MESSUNG DES STATISCHEN DRUCKES

Um den Zustand feuchter Luft umfassend beschreiben zu können, ist die Kenntnis des statischen Luftdruckes erforderlich. Da eine Berechnung dieses Druckes anhand der Verntilatorleistung und des Strömungswiderstandes der Leitungssystems nicht möglich ist, werden an den Stellen der Luftfeuchtemessung Anschlüsse für eine statische Luftdruckmessung angebracht. Ein von der Firma JUMO (Fulda) gefertigter Druckmessumformer Typ 4304 ermittelt den herrschenden Atmosphärendruck.

Messbereich............................... : 90.000 .. 110.000 Pa
Einstellzeit................................ : < 20 ms
Umgebungstemperatureinfluß ... : < 0,02 %/K
Zulässige Mediumstemperatur... : -10 .. + 50 °C
Kennlinienabweichung.............. : < 1 % vom Endwert
Kalibrierzeiten .... : Herstellerkalibrierung vor Aus-
.... : lieferung, danach jährlich[157]

Von diesem „Basiswert“ aus wird der Druckunterschied zu den beiden Feuchtemessstellen über Differenzdruck-Messumformer Typ 604A-1 der Firma DWYER (Michigan, USA) gemessen.

Messbereich..................................: 0 .. 20.600 Pa
Einstellzeit...................................: 250 ms
Zulässige Mediumstemperatur......: -7 .. + 49 °C
Umgebungstemperatureinfluß ......: ± 1 % /10 °C
Genauigkeit ....: ± 2 % vom Endwert

Zur Überprüfung der Genauigkeit des gesamten Messsystems werden die Absolutdruckwerte mit denen der Messstelle des Deutschen Wetterdienstes in Würzburg verglichen[158]. Dabei ist zu beachten, dass in der Meteorologie gewöhnlich mit den sogenannten QFF-Werten gearbeitet wird, bei welchen der auf Meereshöhe umgerechnete Absolutdruck angegeben wird[159]. Dadurch ist es möglich, Wetterdaten unabhängig von der Höhe des Messortes zu vergleichen. Der QFE-Wert hingegen ist der herrschende Absolutdruck. Die an der Würzburger Wetterstation auf 272 m über NN gemessenen Werte werden mittels folgender Umrechnungsformel auf den an der Universität auf 290 m über NN herrschenden Absolutdruck umgerechnet:

$$p_{Sealevel} = p + \frac{Höhenmeter\ über\ NN}{8} \tag{5.5}$$

$p_{Sealevel}$ *Atmosphärischer Druck auf Meereshöhe [Pa]*
p *Atmosphärischer Druck [Pa]*

Für die Berechnungen der Feuchtegehalte ist der QFE-Wert zu verwenden.

5.8 MESSUNG DES VOLUMENSTROMES

5.8.1 Leistungsmerkmale des Flügelradanemometers

Bei der vorliegenden Instrumentierung des Glatt GPCG ist ein Flügelradanemometer (ZS25GA mit 25 mm Durchmesser, Fa. Höntzsch Gmbh, Waiblingen, Deutschland) zur Gasgeschwindigkeitsmessung 50 cm hinter dem Luftansaugstutzen installiert. Die Erfassung des primären Messsignals Flügelraddrehzahl erfolgt durch einen induktiven Näherungsinitiator. Die Drehzahlbestimmung geschieht damit ohne jede Bremswirkung auf das Flügelrad. Der Sensor weist folgende Spezifiktionen auf[160]:

Messbereich ....: 0,4 .. 40 m/s
Temperaturbeständigkeit...........: -20 .. + 125 °C
Maximalfehler Einzelmessung ....: ± 0,15 m/s
Ansprechzeit..............................: ≈ 1/10 s
Reproduzierbarkeit....................: > 99 %

Das Verhältnis von örtlicher Strömungsgeschwindigkeit zur mittleren Geschwindigkeit des Rohrquerschnitts wird als sogenannter **Profilfaktor** PF[161] bezeichnet.

$$PF = \frac{u(x)}{\bar{u}} \tag{5.6}$$

PF *Profilfaktor [-]*
u(x) *Strömungsgeschwindigkeit an der Position x [m/s]*
ū *Mittlere Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*

Ändert sich das Strömungsprofil im Rohrquerschnitt bei unterschiedlichen Volumenströmen, so muss für jeden Strömungszustand ein eigener Profilfaktor bestimmt werden. In der vorliegenden Instrumentierung ist dem Messumformer jedoch ein konstanter Wert von PF = 0,849 vorgegeben. Mit diesem Wert des Profilfaktors wird der Volumenstrom im gesamten Rohrquerschnitt mit folgender Formel berechnet:

$$\dot{V} = PF \cdot A_{Rohr} \cdot u(x) \tag{5.7}$$

$\dot{V}$ *Volumenstrom [m³/h]*
A_{Rohr} *Querschnittsfläche des Rohres [m²]*

Ein Messumformer Typ U1a/230 VAC/LDG16 (Fa. Höntzsch GmbH, Waiblingen, Deutschland) wandelt das Messsignal Strömungsgeschwindigkeit in ein Volumenstromsignal um. Der Wertebereich von 0 .. 400 m³/h wird auf ein Ausgangssignal von 4 bis 20 mA linear abgebildet. Da von der Herstellerfirma geflissentlich auf eine Kalibrierung verzichtet wurde und laut Aussage der Firma Glatt die systematische Abweichung eines Flügelradanemometers sehr häufig bis zu 10 % beträgt, war eine eigene Kalibrierung unumgänglich. Mit

der Problematik einer derartigen Instrumentierung hat sich unter anderem LUY auseinandergesetzt[162].

5.8.2 Ermittlung der Strömungsverhältnisse

Bei Strömungen in einem Rohr treten ganz bestimmte typische Strömungsformen auf, die unterschiedliche physikalische Eigenschaften aufweisen. Die Kenntnis dieser Strömungsform ist Voraussetzung für eine geeignete Geschwindingkeitsbestimmung. Zur Beschreibung von Strömungsverhältnissen ist von dem englischen Physiker Osborne REYNOLDS (1842 bis 1912) erstmals die nach ihm benannte dimensionslose Kennzahl definiert worden, die das Verhältnis der an einem Strömungsteilchen angreifenden Trägheitskräften zu den Zähigkeitskräften angibt:

$$Re = \frac{u \cdot \rho \cdot d}{\eta} \qquad (5.8)$$

u *Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
ρ *Dichte [kg/m³]*
d *Durchmesser des Rohres [m]*
η *Dynamische Viskosität [Pa·s]*

Strömungen bei geometrisch ähnlichen Randbedingungen sind demnach trotz verschieden großer Abmessungen oder Geschwindigkeiten und sogar mit verschiedenen Fluids dann mechanisch ähnlich, wenn nur die Reynoldszahl gleich ist.

Das Verhältnis von Viskosität zu Dichte eines Fluids hat die Dimension Länge²/Zeit und wird als **kinematische Viskosität** bezeichnet:

$$\nu = \frac{\eta}{\rho} \qquad (5.9)$$

ν *Kinematische Viskosität [m²/s]*

Es gilt somit:

$$Re = \frac{u \cdot d}{\nu} \qquad (5.10)$$

Bei der Strömung in einem glatten, geraden Rohr ist in Abhängigkeit von der Größe der Reynolds-Zahl laminare oder turbulente Strömung zu beobachten. Der Übergang von laminarer zu turbulenter Strömung wird bei Überschreiten der sogenannten **kritischen Reynolds-Zahl** beobachtet. Bei kreisrunden Rohren ist der Wert von 2320 für Re_{krit} empirisch ermittelt worden (je nach Turbulenzgrad der Zuströmung kann die kritische Reynoldszahl auch Werte bis 4000 annehmen; ein solcher Zustand ist aber relativ unwahrscheinlich).

Tabelle 5-12 *Gegenüberstellung von laminaren und turbulenten Strömungsverhältnissen*

Laminare Strömung	Turbulente Strömung
• Schichtströmung (Lamina = lateinisch Schicht) • Teilchen bewegen sich auf zur Rohrachse parallelen Stromlinien, ohne sich untereinander zu vermischen • Teilchen bewegen sich ausschließlich innerhalb der freien Weglänge der Moleküle • In die Rohrachse eingebrachter Farbstrahl mischt sich nicht mit Grundströmung (Versuch von Reynolds) • Parabelförmige Geschwindigkeitsverteilung	• Wirbelbehaftete Strömung • Querbewegungen neben der in Rohrachse gerichteten Strömung • Makroskopische Querbewegungen durch Turbulenzballen („*eddies*“) • In die Rohrachse eingebrachter Farbstrahl vermischt sich mit der Grundströmung • Geschwindigkeitsverteilung wesentlich abgeflachter als bei laminarer Strömung
$Re < Re_{krit} = 2320$	$Re > Re_{krit} = 2320$

Das in den GPCG eingebaute Sauggebläse erzielt laut Hersteller einen maximalen Volumenstrom von 86 l/s (= 309,6 m³/h)[163]. Zum Erzielen eines Wirbelbetts im GPCG sind erfahrungsgemäß mindestens 20 m³/h Luftdurchsatz notwendig. Der Rohrdurchmesser des Ansaugstutzens beträgt 70 mm. Mit Gleichung 2.30 resultieren aus diesen Daten folgende mittlere Strömungsgeschwindigkeiten:

$$\bar{u}_{\min} = \frac{\dot{V}_{\min}}{A_{Rohr}} = \frac{20\ \dfrac{m^3}{3600\,s}}{(0{,}035\,m)^2 \cdot \pi}$$

$\bar{u}_{min} = 1{,}44$ m/s

Analog gilt für die theoretische maximale Strömungsgeschwindigkeit:

$$\bar{u}_{\max} = \frac{\dot{V}_{\max}}{A_{Rohr}} = \frac{309{,}6\ \dfrac{m^3}{3600\,s}}{(0{,}035\,m)^2 \cdot \pi}$$

$\bar{u}_{max} = 22{,}35$ m/s

Für Luft mit einer Temperatur von 25 °C, 30 % relativer Luftfeuchtigkeit und einem Luftdruck von 101325 Pa ergibt sich nach der später herzuleitenden Gleichung 6.13 eine Dichte von:

$$\rho = \frac{101325\,Pa}{0{,}28706\,kJ\,kg^{-1}\,K^{-1} \cdot 298{,}15\,K} \cdot \left(1 - 0{,}3779\,\frac{0{,}30 \cdot 3169{,}2\,Pa}{101325\,Pa}\right)$$

$\rho = 1{,}179$ kg/m³

Um die Reynoldszahl der Strömung im Ansaugrohr des GPCG berechnen zu können, wird noch die dynamischen Viskosität der Luft benötigt.

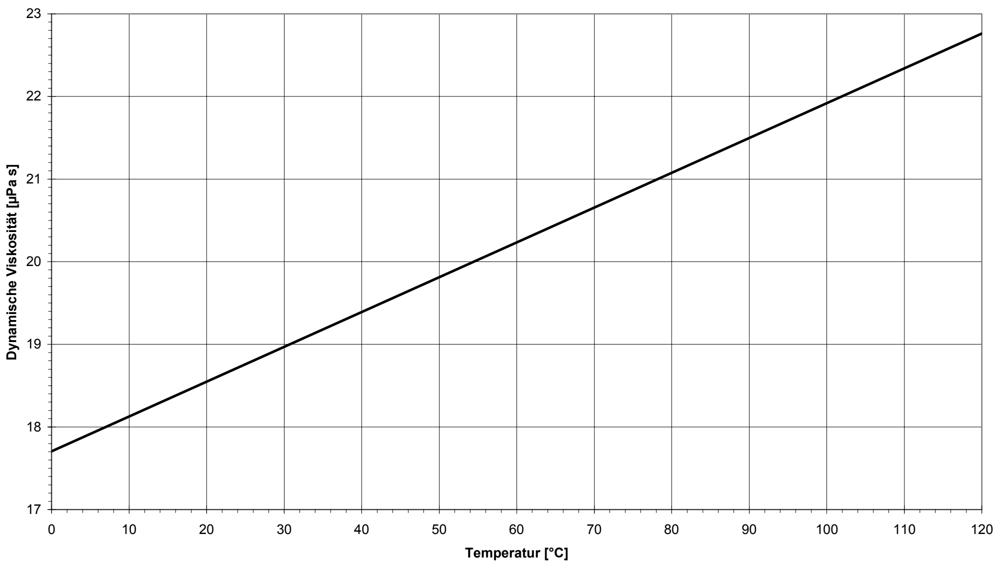


Abbildung 5-34 *Dynamische Viskosität der Luft bei einem Druck von 100.000 Pa*

Die dynamische Viskosität der Luft bei 100.000 Pa Druck kann auch anhand folgender Näherungsformel berechnet werden[164]:

$$\eta = \eta_0 \cdot \left(\frac{T}{T_0} \right)^{0,76} \qquad (5.11)$$

η *Dynamische Viskosität der Luft [Pa s]*
η_0 *Dynamische Viskosität der Luft bei 0°C = 17,19 µPa s*
T_0 *273,15 K*
T *Absolute Temperatur [K]*

Eine exakte Berechnung der Viskosität beliebiger Gase erläutert MIDDLEMAN[165]. Dem Diagramm 5-34 wird für 25 °C ein Wert von $\eta = 18 \cdot 10^{-6}$ Pa·s entnommen. Hiermit kann nun nach Gleichung 5.10 über den gesamten Strömungsgeschwindigkeitsbereich des GPCG die jeweilige Reynoldszahl berechnet werden.

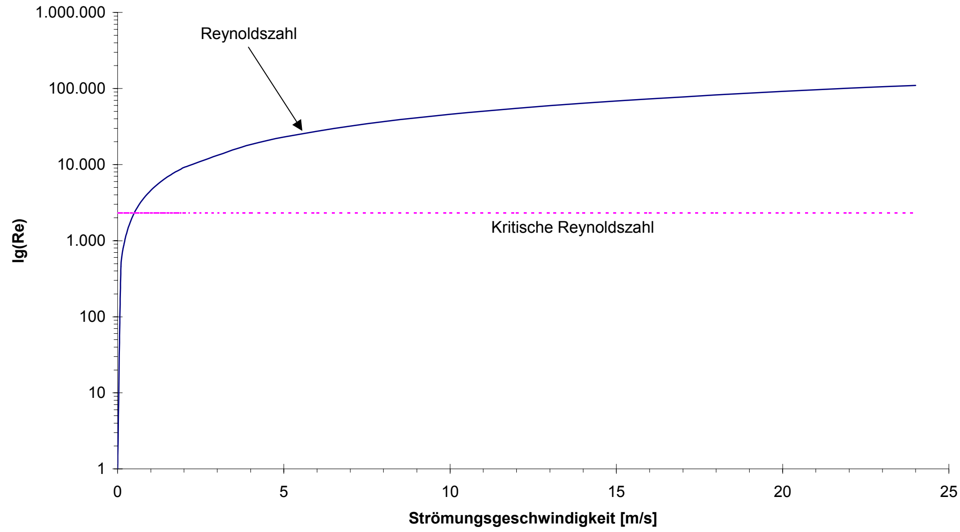


Abbildung 5-35 *Reynoldszahl der Strömung im Ansaugstutzen der GPCG*

Nach Gleichung 5.10 liegen laminare Strömungsverhältnisse bis zu einer Strömungsgeschwindigkeit von:

$$u = \frac{\eta \cdot \mathrm{Re}_{krit}}{\rho \cdot d} = \frac{18 \cdot 10^{-6}\, Pa \cdot s \cdot 2320}{1{,}179\, kg/m^3 \cdot 0{,}07\, m} = 0{,}51\, m/s$$

Da die niedrigste Strömungsgeschwindigkeit des GPCG deutlich größer als dieser Wert ist, liegen folglich in sämtlichen Betriebszuständen der Anlage mit Sicherheit turbulente Strömungsverhältnisse vor.

5.8.3 Ermittlung der Rohrwandreibung

5.8.3.1 Äquivalente Sandkornrauhigkeit und Rohrreibungszahl

Bei der laminaren Durchströmung eines Rohres kann der Volumenstrom mit dem Hagen-Poiseuille´schen Gesetz errechnet werden:

$$\dot{V} = \frac{V}{t} = \frac{\pi \cdot R^4 \cdot \Delta p}{8 \cdot \eta \cdot l} \qquad (5.12)$$

V *Volumen [m³]*
t *Zeit [s]*
R *Rohrradius [m]*
Δp *Druckverlust [Pa]*
η *Dynamische Viskosität [Pa ·s]*
l *Länge des Rohres [m]*

Mit Gleichung 2.30 wird deutlich, dass der durch Reibungskräfte bedingte Druckverlust der Strömungsgeschwindigkeit direkt proportional ist:

$$\dot{V} = A \cdot u = \pi \cdot R^2 \cdot u = \frac{\pi \cdot R^4 \cdot \Delta p}{8 \cdot \eta \cdot l}$$

$$\Delta p = \frac{8 \cdot \eta \cdot l \cdot u}{R^2} \qquad (5.13)$$

Bei der turbulenten Strömung entlang einer Wand treten neben der durch die Viskosität bedingten zähen Schubspannung

$$\tau = \frac{F}{A} = \eta \cdot D = \eta \cdot \frac{du}{dy} \qquad (5.14)$$

τ *Schubspannung [N/m²]*
F *Kraft [N]*
A *Fläche [m²]*
η *Dynamische Viskosität [Pa·s]*
D *Schergefälle [s^{-1}]*
u *Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
y *Wandabstand [m]*

noch zusätzliche Schubspannungen auf, die von der Generierung der Turbulenz herrühren und als **Scheinviskosität** bezeichnet werden. Diese liegen in periodischen Hin- und Herbewegungen des Fluid infolge der Turbulenzerscheinungen begründet. Ausgangspunkt für die Herleitung des Zusammenhangs zwischen Strömungsgeschwindigkeit und Druckverlust bei turbulenter Strömung ist das Kräftegleichgewicht zwischen Druckkräften auf die Stirnfläche eines Fluidzylinders und der durch die Schubspannung entlang der Mantelfläche desselben bedingten Kräfte[166]:

$$F_{Schubspannung} = F_{Druckkräfte}$$

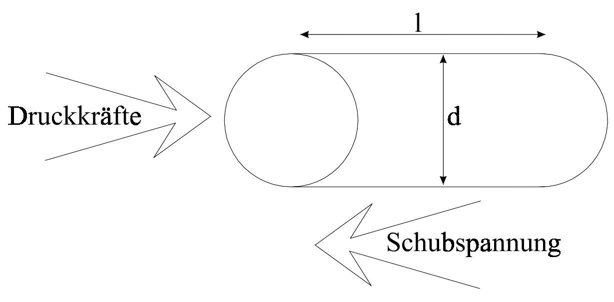


Abbildung 5-36 *Kräfte an einem strömenden Fluidzylinder*

Es gilt folglich durch Berechnen der entsprechenden Oberflächen:

$$A_{Mantelfläche} \cdot \tau = A_{Stirnfläche} \cdot \Delta p$$

$$\pi \cdot d \cdot l \cdot \tau = \Delta p \cdot \frac{\pi \cdot d^2}{4}$$

$$\Delta p = \frac{4 \cdot l \cdot \tau}{d} \qquad (5.15)$$

Die Schubspannung im turbulenten Fall ist also in erster Näherung dem Quadrat der Strömungsgeschwindigkeit proportional:

$$\tau \approx \rho \cdot u^2 \qquad (5.16)$$

Aus Dimensionsgründen ist diesem Ausdruck die Dichte hinzugefügt worden. Durch Einsetzen von Gleichung 5.15 in 5.16 und Einfügen einer Proportionalitätskonstante ζ resultiert:

$$\Delta p = \zeta \cdot \frac{\rho \cdot l \cdot u^2}{2 \cdot d}$$

Der Faktor 2 wird aus Konventionsgründen eingefügt. Die Proportionalitätskonstante ζ wird als **Rohrreibungszahl** nach MOODY* bezeichnet. Sie ist eine dimensionslose Größe. Vergleicht man zwei Strömungsverhältnisse gleicher Reynoldszahl und gleicher dimensionsloser Rauhigkeit, so hat ζ in beiden Fällen den gleichen Zahlenwert. Die Rohrreibungszahl kann eine Funktion der Reynoldszahl sein. Als Grundformel für die Berechnung von ζ gilt:

$$\zeta = \frac{2 \cdot d \cdot \Delta p}{\rho \cdot l \cdot u^2} \qquad (5.17)$$

An dieser Stelle wird durch Einsetzen von Gleichung 5.15 in 5.17 ein Zusammenhang zwischen der Schubspannung τ und der Rohrreibungszahl ζ entwickelt, der später benötigt werden wird.

$$\zeta = \frac{2 \cdot d}{\rho \cdot l \cdot u^2} \cdot \frac{4 \cdot l \cdot \tau}{d} = \frac{8 \cdot \tau}{\rho \cdot u^2}$$

$$\tau = \frac{\zeta \cdot \rho \cdot u^2}{8} \qquad (5.18)$$

Um den Einfluß der Rauhigkeit einer Oberfläche auf die Strömung zu untersuchen, sind von J. NIKURADSE in den frühen 30er Jahren des letzen Jahrhunderts ausführliche Strömungsmessungen an Rohren durchgeführt worden, auf deren Oberfläche Sandkörner definierter Größe fixiert waren. Der Durchmesser der verwendeten Sandkörner wurde als „Sandkornrauhigkeit" k_S [mm] definiert. Die Übertragung der Versuchsergebnisse auf technisch

rauhe Rohre wird durch den Begriff der **äquivalenten Sandkornrauhigkeit** k_s ermöglicht: Hierunter wird die Sandkornrauhigkeit verstanden, die bei gleicher Reynoldszahl den gleichen Reibungskoeffizienten ζ liefert[167]. Bei BOHL findet sich eine Zusammenstellung über die Rauhigkeit gängiger Werkstoffe[168]; für die vorliegende Problemstellung wird demzufolge für die aus poliertem Edelstahl gefertigten Luftleitungsrohre ein Wert von k_s = 0,0015 mm angesetzt. Der Quotient aus Rohrdurchmesser und äquivalenter Sandkornrauhigkeit wird als **relative Wandrauhigkeit** bezeichnet.

Für die Untersuchung des Einflusses der Rohrreibung auf die Ausbildung eines Strömungsprofils müssen laminare und turbulente Strömungen getrennt betrachtet werden.

5.8.3.2 Laminare Strömung

Für die laminare Strömung lässt sich die Rohrreibungszahl aus Gleichung 5.13 ableiten:

$$\Delta p = \frac{8 \cdot \eta \cdot l \cdot u}{R^2} = \frac{2 \cdot 8 \cdot \eta}{\rho \cdot u} \cdot \frac{\rho \cdot l \cdot u^2}{2 \cdot \left(\frac{d}{2}\right)^2}$$

$$\Delta p = \frac{64 \cdot \eta}{\rho \cdot u \cdot d} \cdot \frac{\rho \cdot l \cdot u^2}{2 \cdot d}$$

$$\Delta p = \frac{64}{\frac{u \cdot d}{\nu}} \cdot \frac{\rho \cdot l \cdot u^2}{2 \cdot d}$$

$$\Delta p = \frac{64}{\mathrm{Re}} \cdot \frac{\rho \cdot l \cdot u^2}{2 \cdot d}$$

Für laminare Strömung beträgt die Rohrreibungszahl also:

$$\zeta = \frac{64}{\mathrm{Re}} \qquad (5.19)$$

Die Versuche von NIKURADSE bestätigen, dass im laminaren Gebiet die Rauhigkeit keinen Einfluß auf die Rohrreibungszahl hat. Die laminare Strömung kompensiert die Unebenheiten und macht sie praktisch unwirksam.

5.8.3.3 Turbulente Strömung

Die turbulente Strömung ist ungleich schwieriger zu behandeln als die laminare. Die Untersuchung einer turbulenten Strömung in einem Rohr zeigt, dass in Wandnähe eine laminare Unterschicht zu beobachten ist. Die Dicke dieser Schicht sowie die Rauhigkeit der Rohrwand beeinflussen das globale

---

* *auch „Widerstandsziffer“ oder „Reibungskoeffizient“ genannt und oftmals mit λ abge-*

Strömungsverhalten. Die folgende Abbildung zeigt die Auftragung der Rohrreibungszahl ζ in Abhängigkeit von der Reynoldszahl:

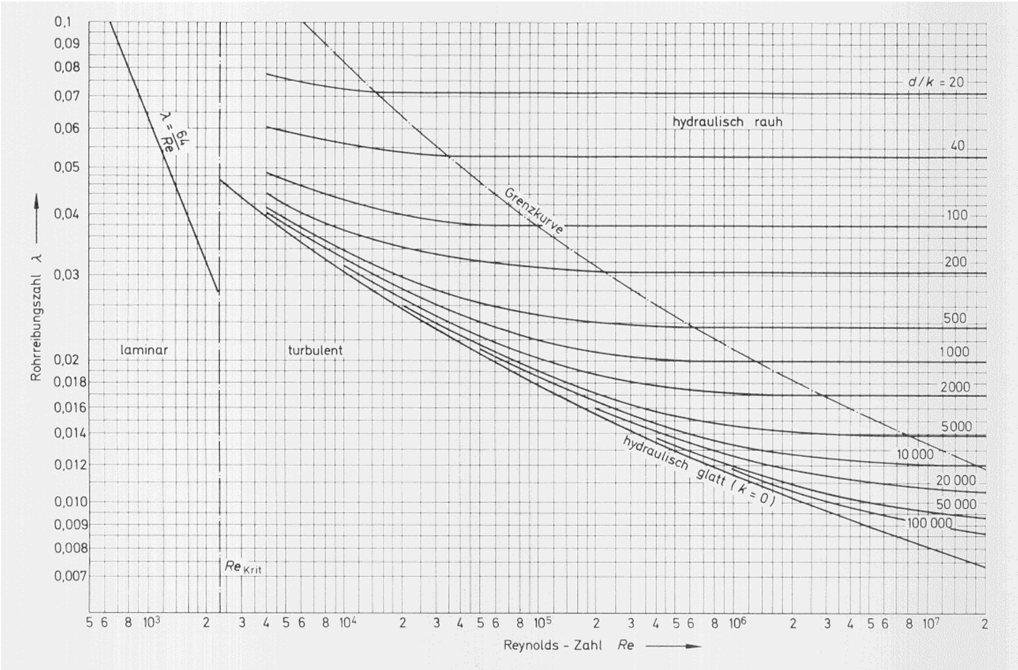


Abbildung 5-37 Rohrreibungszahl in Abhängigkeit der Reynoldszahl

Der linke Bereich für Reynoldszahlen kleiner als Re_{krit} = 2320 beschreibt laminare Strömungsverhältnisse. Bei Übersteigen der kritischen Reynoldszahl steigen die ζ-Werte sprunghaft an. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Turbulenz die Rohrreibungszahlen stark vergrößert. Insbesondere ist im turbulenten Bereich zu bemerken, dass bei rauher Oberfläche ab einer bestimmten Reynoldszahl die Rohrreibungszahl einen konstanten Wert annimmt und nicht mehr abhängig von der Strömungsgeschwindigkeit ist[169]. Je niedriger die relative Wandrauhigkeit (und damit je größer die Rauhigkeitserhebungen), desto eher wird der Bereich konstanter Rohrreibungszahlen erreicht.

Es werden drei Arten strömungsbedingter Wandbeschaffenheit unterschieden[170, 171]:

Hydraulisch glatte Wand:

- Abgrenzung: $\mathrm{Re} \cdot \frac{k_S}{d} < 65$ (5.20)
- Wandrauhigkeiten werden von der laminaren Unterschicht überdeckt
- ζ = f(Re)

Durch Interpolation von Messergebnissen ist 1911 von BLASIUS folgender Zusammenhang ermittelt worden:

kürzt

Blasius

$$\zeta = \frac{0{,}3164}{\sqrt[4]{Re}} \qquad (5.21)$$

$2320 < Re < 10^5$

Von PRANDTL ist folgendes Gesetz theoretisch abgeleitet worden:

Prandtl

$$\frac{1}{\sqrt{\zeta}} = 2 \cdot \lg\left(Re \cdot \sqrt{\zeta}\right) - 0{,}8 \qquad (5.22)$$

105 < Re < 3 · 106

Um die implizierte Darstellung zu umgehen, kann bis zu Re = 10^8 die Prandtl-Formel auch explizit mit Abweichungen von 1 % angegeben werden:

$$\zeta = \frac{0{,}309}{\left(\lg \frac{Re}{7}\right)^2} \qquad (5.23)$$

Übergangsbereich:

- Abgrenzung: $65 < Re \cdot \frac{k_S}{d} < 1300$ (5.24)
- Wandrauhigkeiten erfüllen die laminare Unterschicht, gehen aber nicht über sie hinaus
- $\zeta = f\left(Re, \frac{k_S}{d}\right)$

Colebrook

$$\frac{1}{\sqrt{\zeta}} = -2 \cdot \lg\left[0{,}269 \cdot \frac{k_S}{d} + \frac{2{,}51}{Re \cdot \sqrt{\zeta}}\right] \qquad (5.25)$$

Hydraulisch rauhe Wand:

- Abgrenzung: $Re \cdot \frac{k_S}{d} > 1300$ (5.26)
- Die Rauhigkeitserhebungen sind wesentlich größer als die Dicke der laminaren Unterschicht
- $\zeta = f\left(\frac{k_S}{d}\right)$

$$\zeta = \frac{0{,}25}{\left(\lg \frac{3{,}715 \cdot d}{k_S}\right)^2} \qquad (5.27)$$

$$\mathrm{Re} > 400 \cdot \frac{d}{k_S} \cdot \lg\left(3{,}715 \cdot \frac{d}{k_S}\right)$$

Nikuradse

$$\frac{1}{\sqrt{\zeta}} = 2 \cdot \lg\left(\frac{d}{k_S}\right) + 1{,}14 \qquad (5.28)$$

5.8.3.4 Strömungszustand an der Messstelle des Flügelradanemometers

Bei der niedrigsten Strömungsgeschwindigkeit von $\bar{u}_{min}$ = 1,44 m/s beträgt die Reynoldszahl bei Standardbedingungen:

$$\mathrm{Re} = \frac{1{,}44\, m/s \cdot 1{,}179\, kg/m^3 \cdot 0{,}07\, m}{18 \cdot 10^{-6}\, Pa \cdot s} = 6602$$

Die Entscheidung über die Art der Wandrauhigkeit für diese turbulente Strömung wird anhand der Größe des folgenden Terms ermittelt:

$$\mathrm{Re} \cdot \frac{k_S}{d} = 6602 \cdot \frac{0{,}0015\, mm}{70\, mm} = 0{,}14 < 65$$

Da nach der Relation 5.19 folglich ein hydraulisch glattes Rohr vorliegt, ergibt sich damit die Rohrreibungszahl ζ nach dem Blasius´schen Gesetz mit Gleichung 5.21 zu

$$\zeta = \frac{0{,}3164}{\sqrt[4]{6602}} = 0{,}0351$$

Anhand analoger Rechnungen wurde für den Arbeitsbereich des GPCG (mittlere Strömungsgeschwindigkeiten zwischen 1 und 25 m/s) die jeweilige Rohrreibungszahl bestimmt. Folgendes Diagramm zeigt die Ergebnisse:

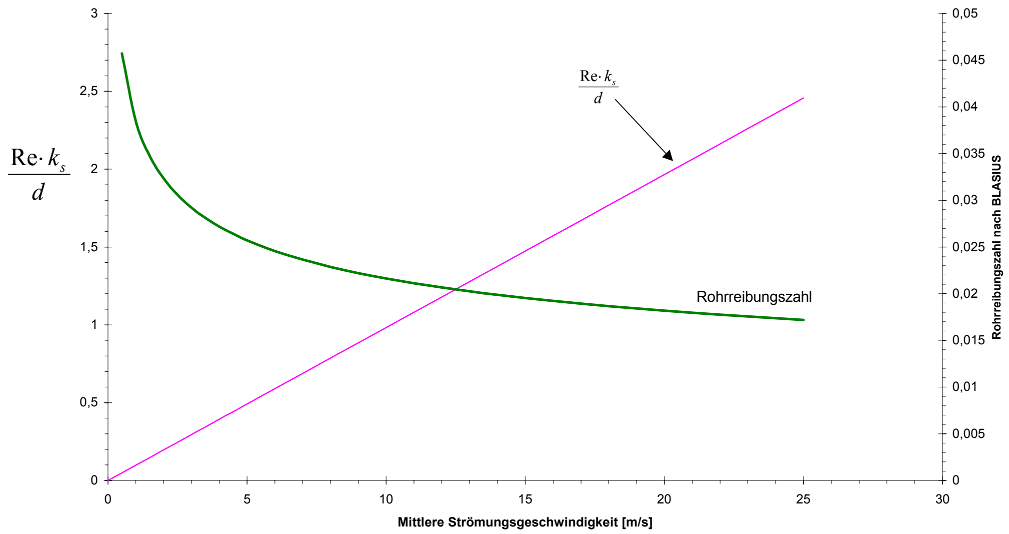


Abbildung 5-38 *Rohrreibungszahl in Abhängigkeit der Strömungsgeschwindigkeit*

Es wird deutlich, dass im gesamten Arbeitsbereich des GPCG an der Messstelle des Flügelradanemometers Strömungsbedingungen eines hydraulisch glatten Rohres vorliegen.

5.8.4 Messung der Geschwindigkeitsverteilung im Rohrquerschnitt

5.8.4.1 Versuchsdesign

Die meisten in der Praxis auftretenden Rohrströmungen sind turbulent; wie dargestellt herrschen auch beim GPCG diese Verhältnisse. Die Kurve, welche die Geschwindigkeitsvektoren im Rohrquerschnitt einhüllt, wird als **Geschwindigkeitsverteilung** bezeichnet. Die Ableitung der Gesetzmäßigkeit für die Geschwindigkeitsverteilung ist für Systeme mit turbulenter Strömung auf rein theoretischem Wege nicht möglich, da neben der Reynolds-Zahl noch die Wandbeschaffenheit des Rohres berücksichtigt werden muss. Die Geschwindigkeitsverteilung kann für turbulente Strömungsverhältnisse allgemeingültig in drei Bereiche unterteilt werden:

a. An der Rohrwand ist u = 0
b. Innerhalb der dünnen laminaren Unterschicht baut sich die Geschwindigkeit nach der parabolischen Verteilung der Laminarströmung auf
c. Innerhalb des turbulenten Strömungsbereichs verläuft die Geschwindigkeitsverteilung wesentlich flacher als bei der laminaren Rohrströmung

Absicht ist es, mit einer Referenzsonde an verschiedenen Punkten im Rohrquerschnitt die Strömungsgeschwindigkeit zu messen, um durch Integration des so aufgenommenen Geschwindigkeitsprofils über die Querschnittsfläche auf den wahren Volumenstrom schließen zu können. Mit dem derart ermittelten Wert lässt sich abschließend ein Korrekturfaktor k´ für das fest installier-

te Flügelradanemometer bestimmen. Da die Geschwindigkeitsverteilung ihre Form bei verschiedenen mittleren Geschwindigkeiten ändert, ist eine Bestimmung dieses Korrekturfaktors k´ bei unterschiedlichen Volumenströmen erforderlich. Zur Rohrwand hin sollten die Messpunkte für ein Strömungsprofil enger beieinander liegen als in der Mitte. Das Versuchsdesign wird wie folgt aufgebaut: Variation des am GPCG einzustellenden Volumenstromes auf fünf Niveaus zwischen 25 m^3/h und maximaler Öffnung der Abluftklappe sowie Messungen der Strömungsgeschwindigkeit vom Wandabstand 0,1 mm beginnend in $^1/_{10}$ mm Schritten. Es ist darauf zu achten, dass die Steuerung des Luftdurchsatzes des GPCG im Betriebsmodus „*Abluftklappenstellung*“ durchgeführt wird. Somit ist ein konstanter Volumenstrom gewährleistet. Würde hingegen der Modus „*Volumenstromsteuerung*“ am GPCG angewählt, so würde automatisch ein Regelkreis aufgebaut, als dessen Folge der aktuelle Volumenstrom permanent um den Sollwert schwankt und damit keine stabilen Messbedingungen schafft.

5.8.4.2 Apparative Realisierung

Die Messstelle für das Flügelradanemometer liegt an einer sehr schwer zugängigen Stelle im GPCG. Der Einbau eines Referenzsensors, mit dem über den gesamten Rohrquerschnitt vermessen werden kann, erscheint hier nicht möglich. Aus diesem Grund wird vor den Ansaugstutzen der GPCG ein 1,5 m langes PVC-Rohr mit einem dem Ansaugrohr der Maschine entsprechenden Innendurchmesser angeflanscht. Der Ansaugstutzen endet stumpf in der Gehäusewand. Um in dem aufgesetzten Rohr die gleichen Einlaufverhältnisse wie an der Messstelle in der GPCG zu simulieren, wird an das offene Ende des Rohres eine senkrecht zum Querschnitt verlaufende Platte mit entsprechender Öffnung fixiert.

Abbildung 5-39 *Einlaufstrecke vor dem Ansaugstutzen des GPCG*

Zur Ausbildung des vollen Geschwindigkeitsprofils ist eine bestimmte Rohrlänge, die sogenannte **Einlaufstrecke** L_{ein}, erforderlich. Nach L. PRANDTL wird die Einlaufstrecke als diejenige Rohrlänge definiert, nach der sich das Geschwindigkeitsprofil um weniger als 1 % vom endgültigen Zustand unterscheidet. Für Kreisrohre wird die Länge L_{ein} nach folgender Beziehung abgeschätzt[172]:

$$L_{ein} \approx a \cdot \mathrm{Re}^b \cdot d \qquad (5.29)$$

L_{ein} *Einlaufstrecke [cm]*
a *Koeffizient*
für laminare Strömung (Re_{krit}<2320) gilt a = 0,06
für turbulente Strömung (Re_{krit}>2320) gilt a = 0,6
b *Exponent*
für laminare Strömung (Re_{krit} <2320) gilt b =1
für turbulente Strömung (Re_{krit} >2320) gilt b =0,25
d *Rohrinnendurchmesser [m]*

Die Länge der Einlaufstrecke an der GPCG ergibt sich bei maximaler theoretischer Geschwindigkeit von u = 25 m/s unter Standardbedingungen damit zu:

$$L_{ein} \approx 0{,}6 \cdot \left(\frac{25\,m/s \cdot 1{,}15\,kg/m^3 \cdot 0{,}07\,m}{18 \cdot 10^{-6}\,Pa \cdot s} \right)^{0{,}25} \cdot 0{,}07\,m = 77\,cm$$

Dies steht in Einklang mit der Faustregel, derzufolge die Einlaufstrecke das Zehn- bis Zwanzigfache des Rohrinnendurchmessers aufweisen sollte[173]. Die Messstelle ist 1 m vom Ende des Rohraufsatzes gewählt und liegt damit sicher hinter der Einlaufstrecke.
Da für die Aufnahme von Geschwindigkeitsprofilen insbesondere dicht an der Wand des Kanals gemessen werden muss, kommen für derartige Messungen nur Sensoren mit geringer Baugröße in Frage. Prandtl-Rohre gibt es zwar in sehr kleiner Ausführung, aber dennoch ist damit eine Messung unmittelbar an der Wand nicht möglich, da der statische Druck hier nicht exakt bestimmt werden kann. Für das aktuelle Problem wird ein Hitzedrahtsensor verwendet, da hiermit bis direkt an die Wand des Rohres gemessen werden kann.
Die Positionierung des Hitzedrahtsensors wird mit einem digitalen Höhenreißer der Firma MITUTOYO Messgeräte GmbH (Oberndorf, Deutschland) realisiert. Das PVP-Rohr ist auf der Innenseite mit einem Graphitlack überzogen. Der Nullpunkt der Messung wird festgelegt, indem der metallische Sensor der Wand langsam angenähert wird, bis schließlich eine leitende Verbindung zustande kommt (Kurzschluß-Justierung). Diese Annäherung des sehr empfindlichen Sensors wird beim ersten Mal zusätzlich optisch mit einem 10 x 30 Fernrohr der Firma SPECWELL überwacht. Der Höhenreißer muss exakt senkrecht zum Rohr justiert sein, da aus der Messung eines schräg verlaufenden Querschnittes ein verzerrtes Geschwindigkeitsprofil resultieren würde.

5.8.4.3 Kalibrierung des Hitzedrahtsensors

Die Kalibrierung des Hitzedrahtsensors Typ 9055P0111 erfolgt in einem Windkanal der Firma PLENT & PARTNERS LTD im Labor für Fluidmechanik des Fachbereichs Maschinenbau der Fachhochschule Schweinfurt. Nach Abschluß des Versuchsaufbaus wird die gesamte Anlage zunächst für mindestens 30 Minuten thermisch äquilibriert. Danach werden durch Veränderung der Gebläseleistung des Windkanals verschiedene Strömungsgeschwindigkeiten eingestellt, die mit einem Prandtlschen Staurohr exakt gemessen werden. Auf jedem Geschwindigkeitsniveau wird jeweils mit einer Wheatstoneschen Brückenschaltung die Spannung gemessen, die notwendig ist, am Hitzdrahtsensor einen konstanten Widerstand zu realisieren. Die Temperatur des Hitzdrahtes bleibt dabei konstant.

Zunächst wird der Arbeitsbereich des Hitzedrahtanemometers ermittelt. Der von der Firma DANTEC produzierte Draht hat eine Durchmesser von 5 µm. Damit ergibt sich die untere Grenze durch Einsetzen in Gleichung 2.39 zu:

$$u = \frac{1558 \cdot 10^{-8} \frac{m^2}{s} \cdot 0{,}08}{0{,}7575 \cdot 5\mu m}$$

u = 0,329 m/s

Die obere Grenze des Arbeitsbereichs lässt sich aus der Definition der Reynoldszahl für Re < 10 ermitteln:

$$u = \frac{\nu \cdot \mathrm{Re}}{d} = \frac{1558 \cdot 10^{-8} \frac{m^2}{s} \cdot 10}{5\mu m}$$

u = 31,2 m/s

Wie dargestellt worden ist, stellt das Kingsche Gesetz die Grundlage dieses Messprinzips dar. In der Praxis zeigt sich hingegen eine bessere Korrelation, wenn der Wurzelausdruck durch den Exponenten 0,45 ersetzt wird. Ein Zusammenfassen der Konstanten ergibt damit:

$$\dot{Q} = \Delta T \cdot \left(A + B \cdot u^{0,45}\right) \tag{5.30}$$

A *Konstante*
B *Konstante*

Die Verknüpfung dieses Ausdruckes mit dem elektrischen Strom im Hitzedraht wird über die Definition der Stromwärme erreicht:

$$W = P \cdot t \equiv Q$$

W *Elektrische Arbeit [Ws]*
P *Leistung [W]*
t *Zeit [s]*
Q *Wärmemenge [J]*

Die elektrische Leistung eines Gleichstroms entspricht dem Produkt aus Spannung multipliziert mit Stromstärke:

$$P = U \cdot I$$

U *Spannung [V]*
I *Stromstärke [A]*

Aus der Definition des Wärmestroms

$$\dot{Q} = \frac{Q}{t}$$

folgt damit:

$$\dot{Q} = \frac{U \cdot I \cdot t}{t} = U \cdot I$$

Durch Auflösen des Ohmschen Gesetzes nach der Stromstärke

$$I = \frac{U}{R}$$

folgt damit:

$$\dot{Q} = \frac{U^2}{R}$$

Durch Einsetzen dieses Ausdruckes in Gleichung 5.30 und Auflösen nach U² ergibt sich somit:

$$U^2 = \Delta T \cdot (A + B \cdot u^{0,45}) \cdot R$$

Der Faktor ΔT wird nun ersetzt durch Umformen von Gleichung 2.36 zu:

$$\Delta T = \frac{1}{\alpha} \cdot \left(\frac{R_{warm}}{R_{kalt}} - 1 \right) \qquad => \qquad U^2 = (A + B \cdot u^{0,45}) \cdot R \cdot \frac{1}{\alpha} \cdot \left(\frac{R_{warm}}{R_{kalt}} - 1 \right)$$

Der letzte Faktor dieser Gleichung wird als **Überhitzungsverhältnis** a bezeichnet

$$a \equiv \frac{R_{warm}}{R_{kalt}} - 1 \qquad (5.31)$$

Für das Messverfahren „*konstanter Widerstand*“ wird zunächst das Überhitzungsverhältnis a experimentell bestimmt. Danach werden die konstanten Zahlenwerte zu zwei neuen Konstanten zusammengefasst:

$$\frac{U^2}{a} = A' + B' \cdot u^{0,45} \tag{5.32}$$

Mit dieser Gleichung ist ein linearer Zusammenhang zwischen der Strömungsgeschwindigkeit u des Fluids und dem Spannungssignal U des Hitzdrahtes bei konstantem Widerstand geschaffen.

Der Sensor hat einen Kaltwiderstand (bei 19 °C Raumtemperatur) von R_k = 3,22 Ω. Die Arbeitstemperatur des Sensors beträgt 250 °C. Bei einem Heißwiderstand von R_w = 5,898 Ω ergibt sich damit ein Überhitzungsverhältnis von a = 0,832. Der einzustellende Gesamtwiderstand des Messsystems (d.h. inclusive Zuleitungskabel) beträgt 6,692 Ω.
Die am Windkanal eingestellte Strömungsgeschwindigkeit wird jeweils grob mit Hilfe einer Lamprechtsonde ermittelt; der genaue Wert resultiert aus der Auswertung des am Prandtl-Staurohr gemessenen Differenzdruckes. Es wurden folgende Messwerte erhalten:

Tabelle 5-13 *Messwerte der Kalibrierung*

Lamprechtsonde u [m/s]	Prandtl p_{dyn} [mbar]	Prandtl u [m/s]	Hitzedraht U [V]	$Y = U^2/a$	$X = u^{0,45}$
0,83	0,004	0,82165	1,585	3,0195	0,9154
1,03	0,006	1,00631	1,613	3,12713	1,00283
1,6	0,015	1,59111	1,674	3,36812	1,23244
2	0,022	1,92694	1,711	3,51866	1,34335
3	0,05	2,90496	1,78	3,80817	1,6159
3,5	0,072	3,48596	1,818	3,9725	1,75406
4,5	0,121	4,51906	1,868	4,19402	1,97139
5,6	0,18	5,51178	1,917	4,41693	2,15567
6	0,212	5,98169	1,937	4,50958	2,23651
7	0,278	6,84981	1,972	4,67402	2,37714
8	0,368	7,88097	2,008	4,84623	2,53198
9,1	0,47	8,90645	2,041	5,00683	2,67527
10	0,57	9,80829	2,068	5,14017	2,79394
15	1,296	14,7897	2,195	5,7909	3,3611
20,8	2,68	21,2678	2,317	6,45251	3,958
25	4,15	26,4655	2,396	6,90002	4,36723
29	5,681	30,9648	2,453	7,23222	4,68695

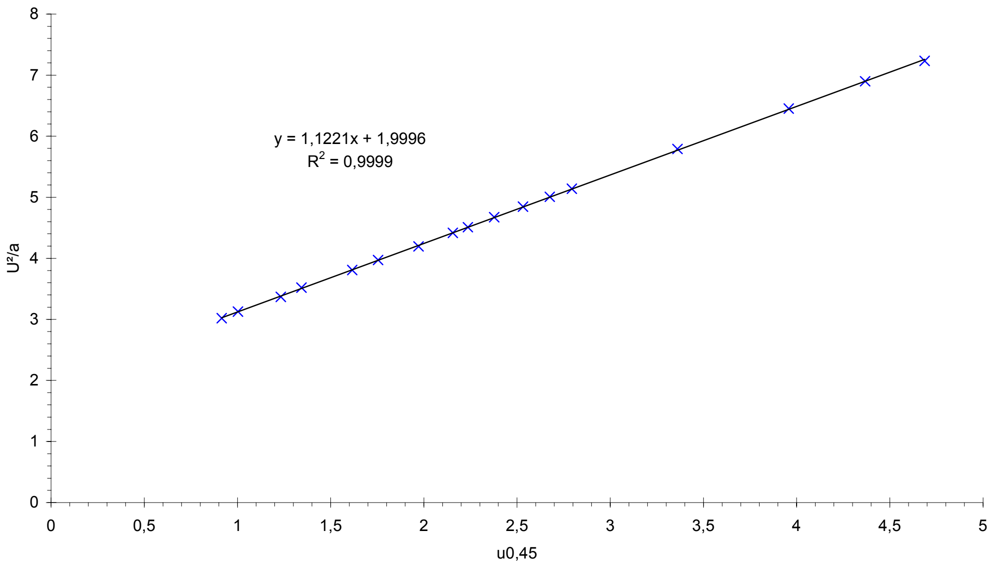


Abbildung 5-40 *Ergebnis der Kalibrierung des Hitzdrahtsensors*

Die Umkehrfunktion dieser Kalibriergeraden ergibt damit die Berechnungsgrundlage für Strömungsgeschwindigkeiten anhand von Spannungssignalen:

$$u = \left(\frac{\frac{U^2}{0{,}832} - 1{,}996}{1{,}1221} \right)^{\frac{1}{0{,}45}} \qquad (5.33)$$

5.8.4.4 Ergebnisse der Strömungsgeschwindigkeitsmessung

An der GPCG wurden in der Betriebsart „*Abluftklappen-Steuerung*" auf sechs Niveaus konstante Volumenströme eingestellt und mit dem Hitzedrahtsensor das jeweilige Geschwindigkeitsprofil bestimmt. Aufgrund der turbulenten Strömungsverhältnisse sind charakteristische Schwankungen der Geschwindigkeitsmesswerte zu registrieren. Da ein kontinuierliches Aufzeichnen der Spannungsmesswerte in Abhängigkeit von der Zeit nicht möglich war, wurde auf jeder Messstufe der Minimal- und Maximalwert des Signals in einem Beobachtungszeitraum von einer Minute notiert und der arithmetische Mittelwert als Messwert verwendet. Hieraus wurden unter Anwendung der Gleichung 5.33 die Strömungsgeschwindigkeiten errechnet*. Die Übertragung in eine Graphik erlaubt den Vergleich der so erhaltenen Strömungsprofile:

* *Messergebnisse siehe Anhang*

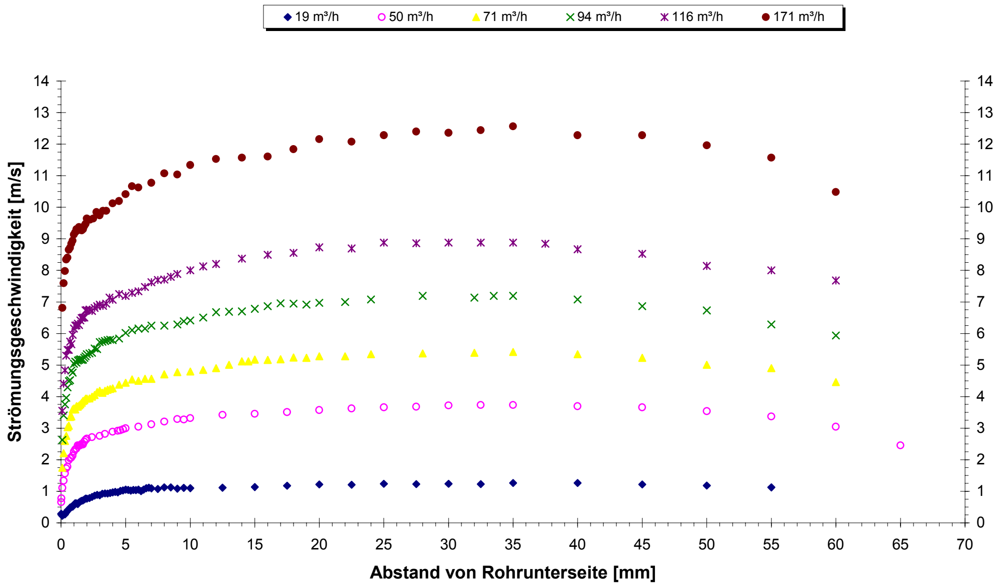


Abbildung 5-41 Übersicht über die Stömungsprofile

In Übereinstimmung mit der Theorie nimmt die Strömungsgeschwindigkeit vom Wert Null am Rand bis zum Maximalwert in der Mitte des Rohres bei 35 mm zu. Die Messung war nur bis zu einer Höhe von 65 mm über der Rohrunterseite möglich; aus den verfügbaren Daten ist aber dennoch die Symmetrie des Strömungsprofils deutlich erkennbar.

In einem zusätzlichen Versuch wurde die Strömungsgeschwindigkeit in der Rohrmitte in Abhängigkeit der Einstellung diskreter Sollvolumenströme am GPCG gemessen. Folgende Graphik zeigt die Messergebnisse:

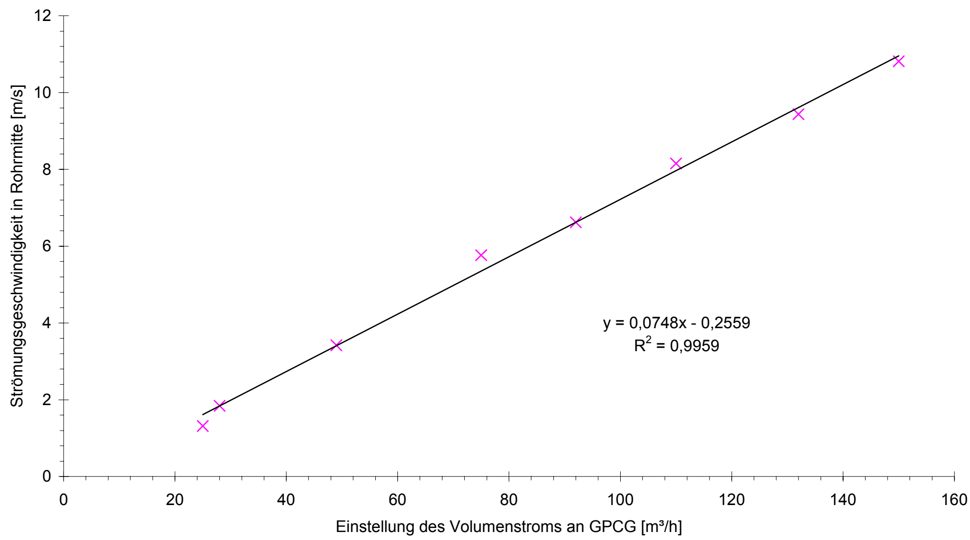


Abbildung 5-42 Hitzdrahtmessung der Strömungsgeschwindigkeit in der Rohrmitte in Abhängigkeit der VS-Einstellung am GPCG

Aus dem Korrelationskoeffizienten der statistischen linearen Näherungsfunktion kann geschlossen werden, dass ein linearer Zusammenhang zwischen dem Sollvolumenstrom am GPCG und der daraus resultierenden Strömungsgeschwindigkeit in der Rohrmitte besteht.

5.8.5 Bestimmung des Geschwindigkeitsverteilungsgesetzes

Im Folgenden soll eine mathematische Beschreibung der erhaltenen Strömungsprofile in Form einer Funktion u = f(y) ermittelt werden. Ziel ist es, durch Messung der maximalen Strömungsgeschwindigkeit in der Rohrmitte auf das gesamte Strömungsprofil schließen zu können. Laut Theorie zeigen turbulente Geschwindigkeitsprofile einen Knick; hier wird die höchste Strömungsgeschwindigkeit gemessen. Im Vergleich zu einem parabolisch verlaufenden Geschwindigkeitsprofil einer laminaren Strömung zeigen turbulente Strömungsprofile generell einen deutlich abgeflachteren, völligeren Verlauf. Turbulenzen wirken demnach weitgehend ausgleichend auf die Geschwindigkeitsverteilung. Mit wachsender Reynoldszahl wird das Strömungsprofil immer rechteckförmiger.

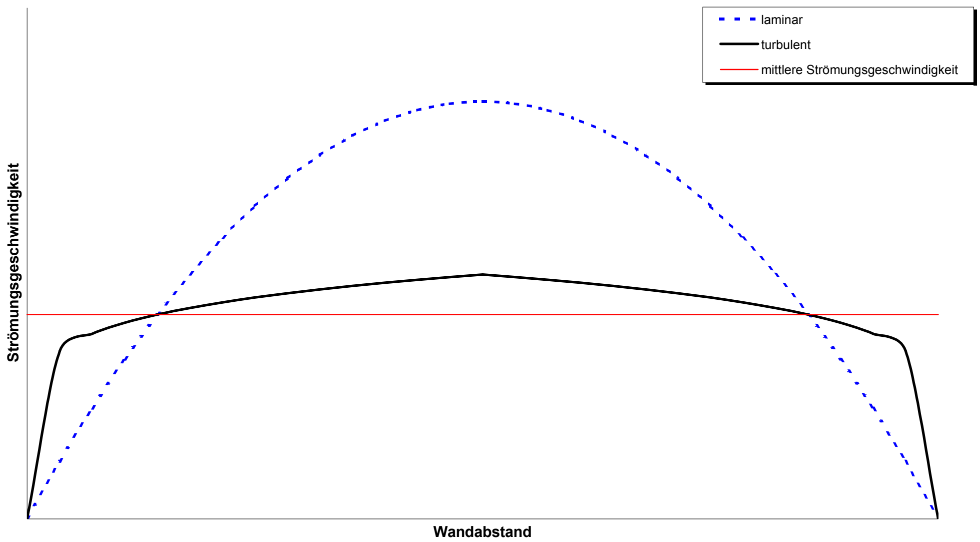


Abbildung 5-43 *Vergleich laminares mit turbulentem Strömungsprofil*

5.8.5.1 Potenzgesetz

Das Geschwindigkeitsverteilungsgesetz für eine turbulente Strömung in einem kreisförmigen Rohr kann allgemein nach dem Potenzgesetz formuliert werden gemäß[97]:

$$\frac{u}{u_{\max}} = \left(\frac{R_{Rohr} - r}{R_{Rohr}}\right)^{\frac{1}{n}} \qquad (5.34)$$

u	*Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
u_{max}	*Maximale Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
R_{Rohr}	*Radius des Rohres [m]*
r	*Abstand Messpunkt von Rohrmitte [m]*
n	*Exponent gemäß empirischer Tabelle*

Diese einfache Potenzformel stellt eine Näherung dar; sie gilt nicht in unmittelbarer Wandnähe[174]. Da das Potenzgesetz theoretisch vom Blasiusschen

Gesetz abgeleitet werden kann, besitzt ersteres ebenfalls nur bis zu Re ≤ 100.000 Gültigkeit[171].
Der Exponent n im Geschwindigkeitsverteilungsgesetz wird folgender, empirisch gewonnener Graphik entnommen[175]:

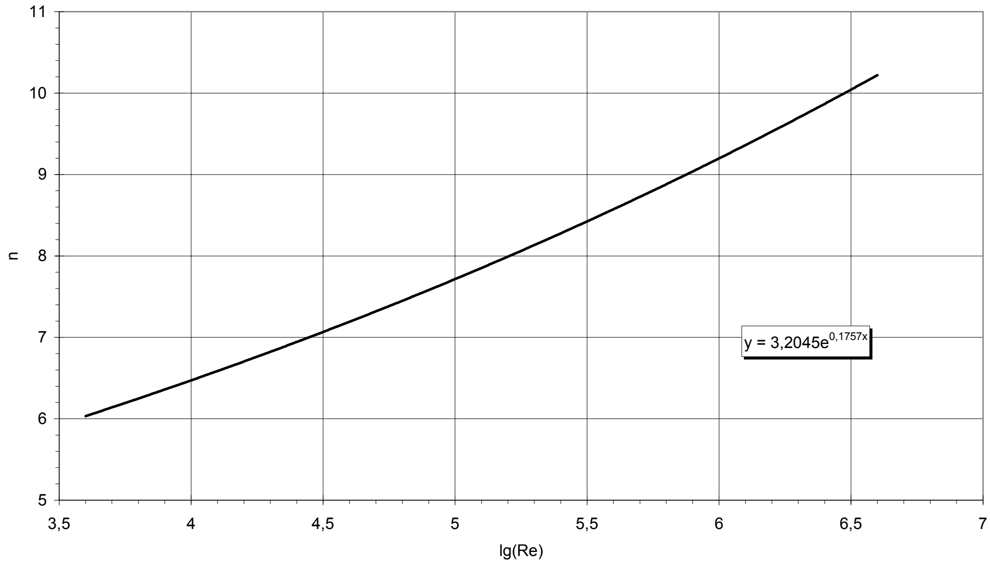


Abbildung 5-44 *Der Exponent n im Potenzgesetz*

Um den Exponenten n direkt berechnen zu können, ist eine exponentielle Regression durchgeführt worden. Hieraus resultiert folgende Berechnungsformel für n:

$$n = 3{,}2045 \cdot e^{0{,}1757 \cdot \lg(\mathrm{Re})} \qquad (5.35)$$

Je größer die Reynoldszahl ist, desto kleiner wird der Exponent $^1/_n$ im Potenzgesetz. Aus dem Vergleich mit den Funktionsgraphen der Kurvenschar $y = \sqrt[n]{x}$ wird ersichtlich, dass aus zunehmenden Reynoldszahlen ein immer rechteckförmigerer Verlauf des Strömungsprofils resultiert.

Für das Beispiel der Maximaldurchströmung des GPCG soll im Folgenden das Potenzgesetz angewendet werden. Nachfolgende Messwerte werden der Berechnung zugrunde gelegt:

u_{max} = 12,564 m/s
p = 101.325 Pa
υ = 23 °C
φ = 45 %
η = $18{,}5 \cdot 10^{-6}$ Pa · s

Aus der daraus resultierenden Dichte der feuchten Luft von ρ = 1,186 kg/m³ ergibt sich die Reynoldszahl zu:

$$\mathrm{Re} = \frac{u \cdot \rho \cdot L}{\eta} = \frac{12{,}564\, m/s \cdot 1{,}186\, kg/m^3 \cdot 0{,}07\, m}{18{,}5 \cdot 10^{-6}\, Pa \cdot s}$$

Re = 56381

Mit Gleichung 5.35 wird damit der Exponent n berechnet zu:

$$n = 3{,}2045 \cdot e^{0{,}1757 \cdot \lg(56381)} = 7{,}384$$

Nachstehende Abbildung zeigt das Ergebnis dieser Berechnung:

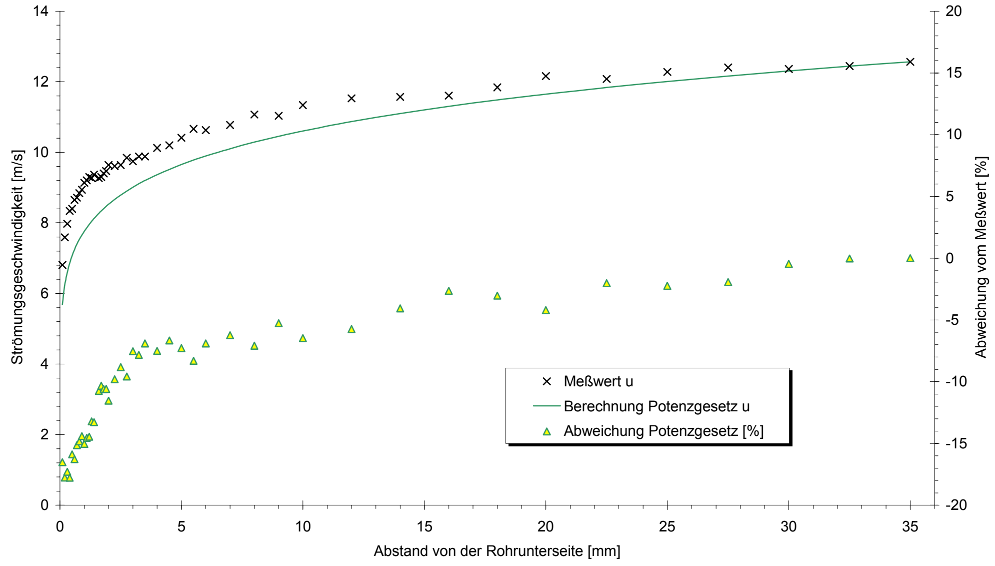


Abbildung 5-45 *Potenzgesetz für maximale Durchströmung des GPCG n = 7,384*

Es wird deutlich, dass die Abweichung der mittels Potenzgesetz ermittelten Werte von den Messwerten zur Rohrwand hin unvertretbar groß wird.

Eine Verbesserung der Genauigkeit des Potenzgesetzes ist mit einer statistischen Kurvenanpassung möglich. Mit Hilfe geeigneter Statistiksoftware (SAS 8.01) kann der Exponent n durch eine Minimierung der Summe der Fehlerquadrate optimiert werden*. Da die Messung der Maximalgeschwindigkeit in der Rohrmitte fehlerbehaftet ist, kann auch dieser Wert statistisch aus der Anpassung des Kurvenzuges ermittelt werden. Hierdurch sind folgende Werte ermittelt worden:

n = 10,323 und u_{max} = 12,627 m/s

Folgende Graphik zeigt die Ergebnisse der verschiedenen Berechnungen der Geschwindigkeitsverteilung im Vergleich:

* *siehe Programmlisting im Anhang*

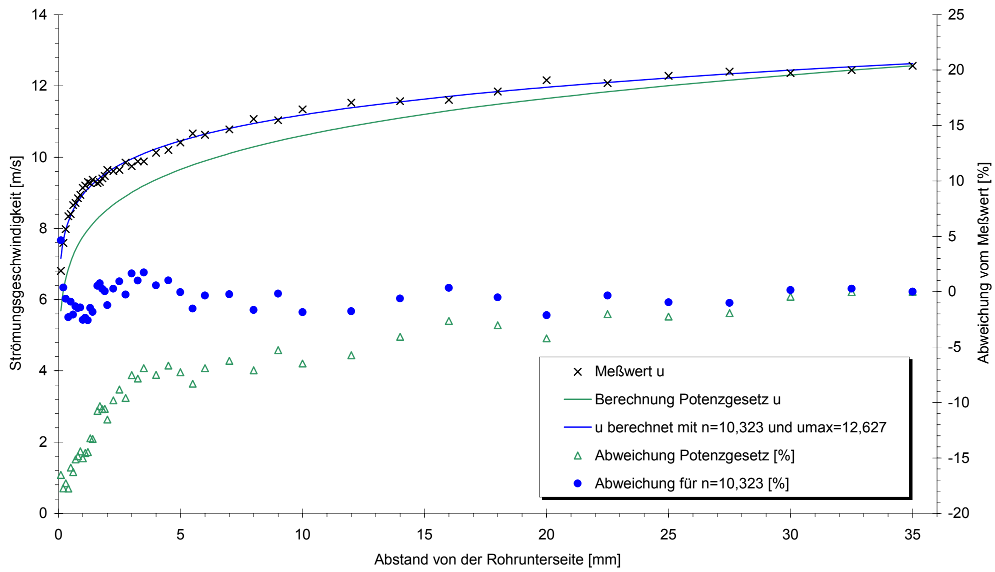


Abbildung 5-46 *Potenzgesetz für maximale Durchströmung des GPCG*

Mit den statistisch angenäherten Werten für n und u_{max} lässt sich das Strömungsprofil zufriedenstellend mit Hilfe des Potenzgesetzes berechnen.

5.8.5.2 Berechnung der mittleren Strömungsgeschwindigkeit

Während bei der laminaren Durchströmung eines Rohres der volumetrische Mittelwert der Strömungsgeschwindigkeit genau der Hälfte der maximalen Strömungsgeschwindigkeit entspricht, kann diese Beziehung nicht für turbulente Verhältnisse gelten, da sich hier bekanntlich das Strömungsprofil mit der Reynoldszahl ändert. Aus dem Potenzgesetz kann eine Berechnungsformel abgeleitet werden, die es erlaubt, nach experimenteller Bestimmung der maximalen Strömungsgeschwindigkeit auf die räumliche **mittlere Strömungsgeschwindigkeit** $\bar{u}$ zu schließen[176]:

$$\frac{\bar{u}}{u_{\max}} = \frac{2 \cdot n^2}{(n+1) \cdot (2n+1)} \qquad (5.36)$$

$\bar{u}$ *Mittlere räumliche Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
u_{max} *Maximale Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
n *Exponent gemäß empirischer Tabelle*

Die nachfolgende Tabelle zeigt die entsprechenden Werte für die hydraulisch glatte Rohrströmung[171]

Tabelle 5-14 *Mittlere Strömungsgeschwindigkeiten für hydraulisch glatte Rohrströmung*

n	**4**	**5**	**6**	**7**	**8**	**9**	**10**	**Laminar**
Re	nur bei hydraulisch rauhen Rohren			$2 \cdot 10^4$	10^5	$3{,}5 \cdot 10^5$	10^6	< 2320
$\frac{\bar{u}}{u_{max}}$	0,712	0,757	0,792	0,817	0,837	0,853	0,866	0,5

Für den praktischen Bereich gilt: $\frac{\bar{u}}{u_{max}} = 0{,}84 \pm 4\%$

Die folgende Graphik verdeutlicht den Zusammenhang zwischen Reynoldszahl und mittlerer Strömungsgeschwindigkeit. Die Berechnung erfolgte durch Kombination von Gleichung 5.35 mit 5.36:

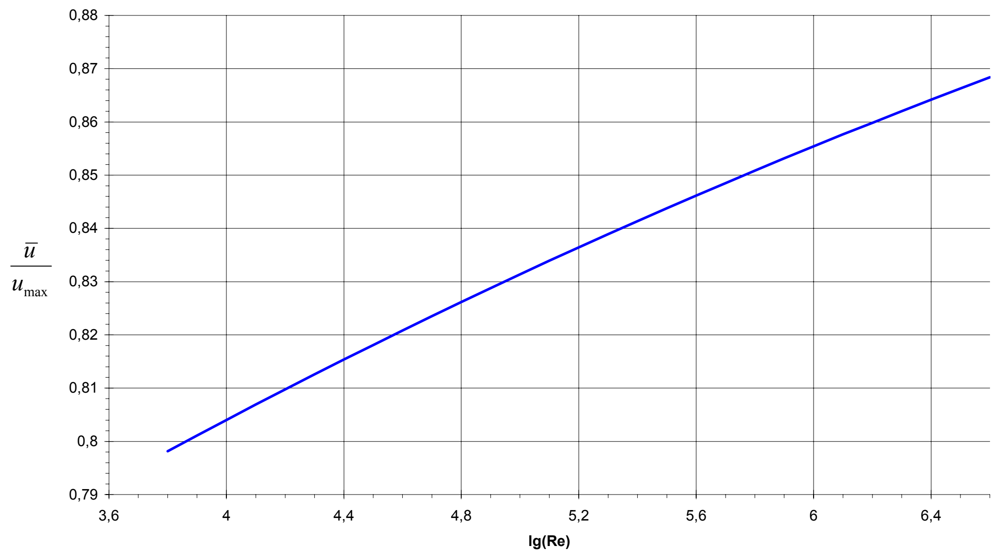


Abbildung 5-47 *Verhältnis mittlerer räumlicher zu maximaler Strömungsgeschwindigkeit bei turbulenter Rohrströmung*

Für die maximale Förderleistung des GPCG resultiert damit die mittlere Strömungsgeschwindigkeit zu:

$$\bar{u} = 12{,}564\, m/s \cdot \frac{2 \cdot 7{,}384^2}{(7{,}384+1)\cdot(2\cdot 7{,}384+1)} = 10{,}364\, m/s$$

5.8.5.3 Universelle Geschwindigkeitsverteilung nach Reichardt

Um Strömungsprofile genauer als mit dem Potenzgesetz beschreiben zu können, ist eine dimensionslose Beschreibung des Sachverhalts der turbulenten Durchströmung eines geraden Rohres unternommen worden. Ausgangspunkt hierfür ist die Unterteilung jedes Geschwindigkeitsprofils einer turbulenten Rohrströmung in drei Segmente, die abschnittsweise beschrieben werden:

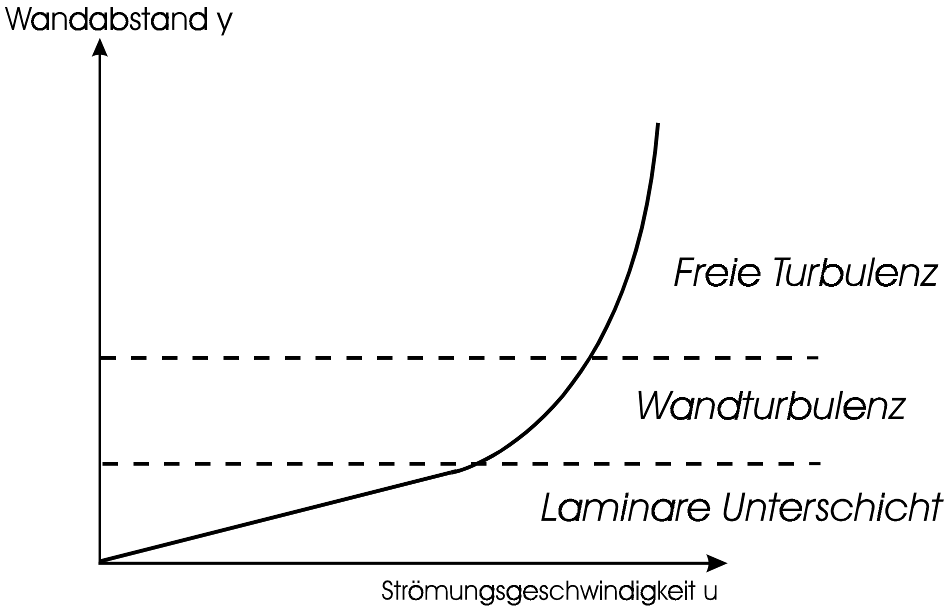


Abbildung 5-48 *Unterteilung des Geschwindigkeitsprofils einer turbulenten Rohrströmung*

Bei der turbulenten Strömung entlang einer Wand wird die Turbulenzbewegung durch die Wand behindert. Infolgedessen verschwinden auch die für die Turbulenz charakteristischen Schwankungsgeschwindigkeiten bei Annäherung an die Wand. Unmittelbar an der Wand (y = 0) haftet die Flüssigkeitsschicht fest. In einer dünnen Schicht bildet sich eine laminare Strömung aus (die sogenannte laminare Unterschicht); hier wirken ausschließlich molekulare Viskositätskräfte. Die lokale, flächenbezogene Wandreibungskraft, die ein Fluid auf die Wand ausübt, wird als **Wandschubspannung** τ_W bezeichnet und über den Newtonschen Reibungsansatz definiert[177, *]:

$$\tau_W = \eta \cdot \left(\frac{du}{dy}\right)_W \qquad (5.37)$$

τ_W *Wandschubspannung [N/m²]*
η *Dynamische Viskosität [Pa·s]*
$\left(\frac{du}{dy}\right)_W$ *Geschwindigkeitsgradient an der Wand [s^{-1}]*

Zur Vereinfachung der Schreibweise wird aus der Wandschubspannung τ_W der Begriff der **Wandschubspannungsgeschwindigkeit** u_τ abgeleitet:

$$u_\tau = \sqrt{\frac{\tau_W}{\rho}} \qquad (5.38)$$

u_τ *Wandschubspannungsgeschwindigkeit [m/s]*

* *Da eine laminare Grenzschicht einen sehr viel kleineren Geschwindigkeitsgradienten an der Wand besitzt, weist sie im Vergleich zur turbulenten eine deutlich reduzierte Wandreibung auf*

Die Wandschubspannungsgeschwindigkeit ist eine charakteristische Größe wandnaher Strömungen und wird vielfältig zur Beschreibung der Ähnlichkeit von Grenzschichten verwendet. Der Quotient aus Strömungsgeschwindigkeit und Wandschubspannungsgeschwindigkeit liefert die **dimensionslose Strömungsgeschwindigkeit** u^+:

$$u^+ = \frac{u}{u_\tau} \qquad (5.39)$$

Der **dimensionslose Wandabstand y^+** ist definiert gemäß:

$$y^+ = \frac{u_\tau \cdot y}{\nu} \qquad (5.40)$$

Jede turbulente Geschwindigkeitsverteilung lässt sich nun als Funktion der dimensionslosen Strömungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit des dimensionslosen Wandabstandes beschreiben:

$$u^+ = f(y^+) \qquad (5.41)$$

Für die Bestimmung dieses universellen funktionellen Zusammenhangs ist zunächst eine räumliche Unterteilung eines turbulenten Strömungsprofils in folgende drei Intervalle erforderlich:

Tabelle 5-15 *Einteilung turbulenter Strömungsprofile*

Dimensionsloser Wandabstand y^+	Bezeichnung	Charakteristik
0 .. 5	Viskose, laminare Unterschicht	Turbulente Diffusion vernachlässigbar
5 .. 30	Übergangsgebiet	
> 30	Wandturbulenz	Molekulare Diffusion vernachlässigbar

Für die viskose Unterschicht gilt unter der Annahme einer konstanten Schubspannung ein linearer Zusammenhang zwischen dem dimensionslosen Wandabstand und der dimensionslosen Strömungsgeschwindigkeit. Dies lässt sich durch direkte Integration von Gleichung 5.14 über den Wandabstand y zeigen.

$$u^+ = y^+ \qquad \text{für } y^+ < 5 \qquad (5.42)$$

Mit Hilfe einfacher Turbulenzhypothesen gelang es PRANDTL, eine Beziehung für den wandnahen Turbulenzbereich abzuleiten, das sogenannte *„logarithmische Wandgesetz“*[178]:

$$u^{+} = \frac{1}{\kappa} \cdot \ln y^{+} + C \qquad \text{für } y^{+} > 30 \tag{5.43}$$

κ *von Kármán-Konstante [-]*
C *Integrationskonstante [-]*

Nach Messungen von NIKURADSE beträgt κ = 0,40 und C = 5,5.
Mit dem Übergang zum dekadischen Logarithmus resultiert daraus die Gleichung:

$$u^{+} = 5{,}75 \cdot \lg\left(y^{+}\right) + 5{,}5 \qquad \text{für } y^{+} > 30 \tag{5.44}$$

Durch Messungen von NIKURADSE und REICHARDT ist auch der Übergangsbereich $5 < y^+ < 30$ intensiv untersucht worden. REICHARDT ist es gelungen, eine Funktion zu entwickeln, die den funktionellen Zusammenhang zwischen y^+ und u^+ in allen drei Schichten beschreibt[179, *]:

$$u^{+} = \frac{1}{\kappa} \cdot \ln\left(1 + \kappa \cdot y^{+}\right) + 7{,}8 \cdot \left[1 - e^{-\frac{y^{+}}{11}} - \frac{y^{+}}{11} \cdot e^{-0{,}33 \cdot y^{+}}\right] \tag{5.45}$$

Die folgende Graphik zeigt den Kurvenverlauf der beiden abschnittsweise definierten sowie den der universellen Geschwindigkeitsverteilungsfunktion. Die zwei Pfeile markieren die Grenzen des Definitionsintervalls.

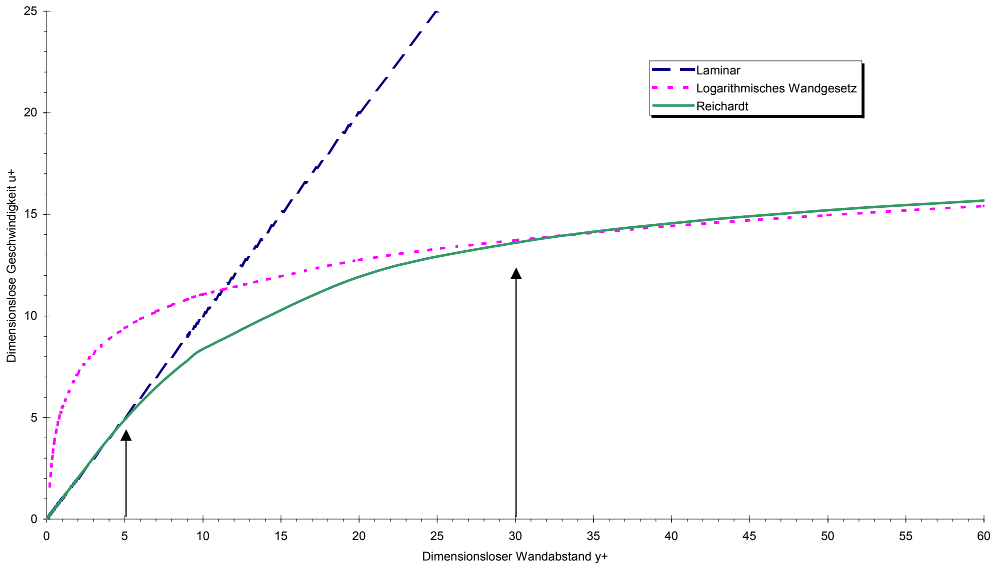


Abbildung 5-49 *Universelle Geschwindigkeitsfunktionen*

In der Literatur findet sich häufiger eine halblogarithmische Darstellung der drei Funktionen, bei welcher der dimensionslose Abstand y^+ logarithmiert wird:

* *Das Reichardt-Gesetz gilt auch in der freien Atmosphäre oft bis in Höhen von einigen Hunderten von Metern*

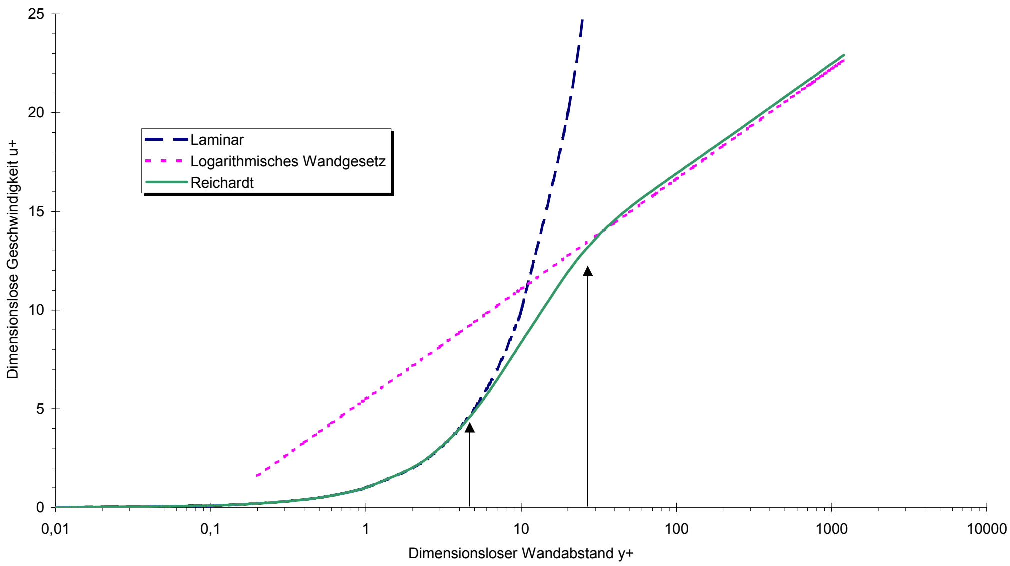


Abbildung 5-50 *Universelle Geschwindigkeitsfunktionen in halblogarithmischer Darstellung*

Um die allgemeine Form der dimensionslosen Darstellung auf das jeweilige Messproblem anwenden zu können, muss in den Bestimmungsgleichungen für y^+ und u^+ der Ausdruck der Wandschubspannungsgeschwindigkeit u_τ durch eine rechnerisch unmittelbar zugängige Größe ersetzt werden. Dies gelingt mit der Rohrreibungszahl ζ durch Anwendung der allgemeinen Gleichung 5.184.19 und Einsetzen in Gleichung 4.38:

$$\tau_W = \frac{\zeta \cdot \rho \cdot \bar{u}^2}{8} \qquad \text{in} \qquad u_\tau = \sqrt{\frac{\tau_W}{\rho}}$$

$$u_\tau = \bar{u} \cdot \sqrt{\frac{\zeta}{8}} \tag{5.46}$$

Mit dem so direkt bestimmbaren Wert der Wandschubspannungsgeschwindigkeit u_τ folgt für den dimensionslosen Wandabstand und die dimensionslose Strömungsgeschwindigkeit:

$$y^+ = \frac{\bar{u}}{\nu} \cdot \sqrt{\frac{\zeta}{8}} \cdot y \tag{5.47}$$

$$u^+ = \frac{1}{\bar{u}} \cdot \sqrt{\frac{8}{\zeta}} \cdot u \tag{5.48}$$

Im Folgenden wird am Beispiel des maximalen Volumenstromes des GPCG das gemessene Strömungsprofil in eine dimensionslose Darstellung überführt und mit dem Kurvenverlauf des Reichardt-Gesetzes verglichen.

Messwerte:	*Berechnete Größen:*	
$u_{max} = 12{,}564\ m/s$	$\rho = 1{,}186\ kg/m^3$	
$p = 101325\ Pa$	$\nu = 1{,}569 \cdot 10^{-5}\ m^2/s$	(gem. Gleichung 5.1)
$\upsilon = 23\ °C$	$Re = 56381$	
$\varphi = 45\ \%$	$n = 7{,}384$	(gem. Gleichung 5.27)
$\eta = 18{,}5 \cdot 10^{-6}\ Pa \cdot s$	$\bar{u} = 10{,}364\ m/s$	(gem. Gleichung 5.28)

Für das PVC-Rohr wird eine äquivalente Sandkornrauhigkeit von k_S = 0,0015 mm angenommen. Durch Einsetzen der Zahlenwerte in Gleichung 5.20 wird ersichtlich, dass ein hydraulisch glattes Rohr vorliegt:

$$\mathrm{Re} \cdot \frac{k_S}{d} = 56381 \cdot \frac{0{,}0015\,mm}{70\,mm} = 1{,}208 < 65$$

Die Rohrreibungszahl ζ wird folglich mit dem Blasius´schen Gesetz (5.21) berechnet:

$$\zeta = \frac{0{,}3164}{\sqrt[4]{56381}} = 0{,}0205$$

Mit den so erhaltenen Werten für ζ sowie ν und ū können die erhaltenen Messwerte unmittelbar in eine dimensionslose Darstellung überführt werden:

Gem. Gleichung 5.39:

$$y^+ = \frac{\bar{u}}{\nu} \cdot \sqrt{\frac{\zeta}{8}} \cdot y = \frac{10{,}364\ m/s}{1{,}569 \cdot 10^{-5} m^2/s} \cdot \sqrt{\frac{0{,}0205}{8}} \cdot y = 33437\,m^{-1} \cdot y$$

Gem. Gleichung 5.40:

$$u^+ = \frac{1}{\bar{u}} \cdot \sqrt{\frac{8}{\zeta}} \cdot u = \frac{1}{10{,}364\,m/s} \cdot \sqrt{\frac{8}{0{,}0205}} \cdot u = 1{,}906\,m/s \cdot u$$

Die Dicke der laminaren Unterschicht kann aus Gleichung 5.39 berechnet werden:

$$5 > y^+ = 33437\,m^{-1} \cdot y$$

$$y < 0{,}15\ mm$$

Die folgende Graphik zeigt den Vergleich zwischen den zu dimensionslosen Größen transformierten Messwerten des Versuchs maximaler Durchströmung des GPCG und den nach dem Reichardtschen Gesetz zu erwartenden Werten:

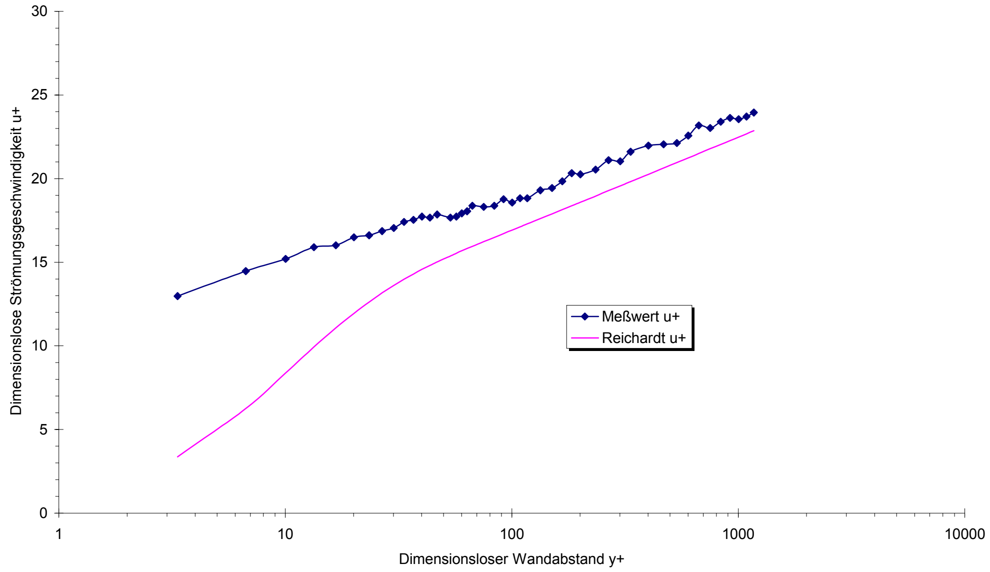


Abbildung 5-51 *Dimensionslose Darstellung der Messwerte maximaler Volumenstrom am GPCG in halblogarithmischer Auftragung*

Der halblogarithmischen Darstellung kann entnommen werden, dass die gemessenen Werte immer größer sind als die nach dem Reichardtschen Gesetz zu erwartenden. Die Abweichung nimmt zur Rohrwand hin beträchtlich zu:

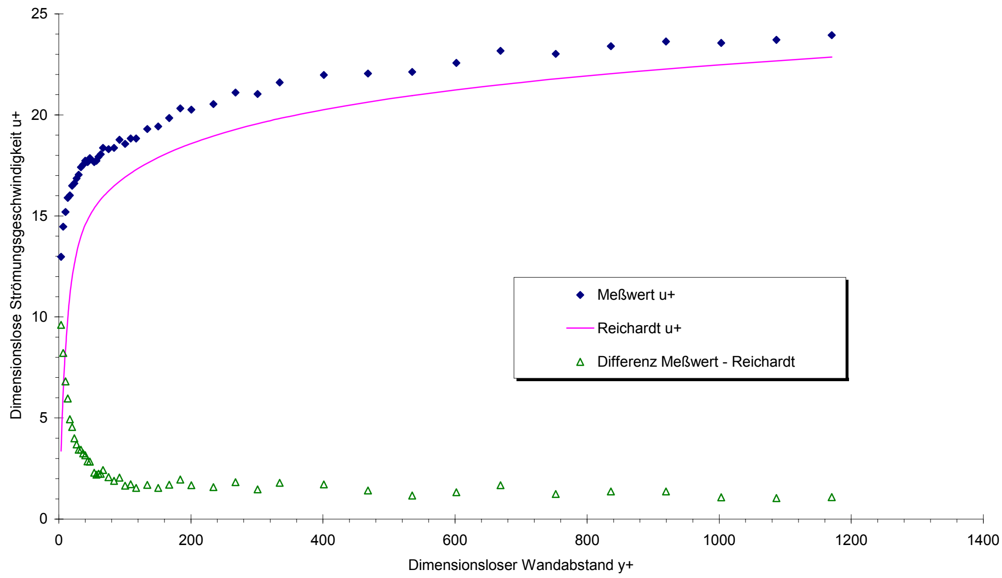


Abbildung 5-52 *Dimensionslose Darstellung der Messwerte maximaler Volumenstrom am GPCG*

Die lineare Darstellung zeigt, dass beide Kurven die gleiche Qualität aufweisen. Das Reichardtsche Gesetz ergibt immer zu niedrige Werte der Strömungsgeschwindigkeit; die Abweichung nimmt mit der Annäherung an die Rohrwand hin zu.

5.8.5.4 Statistische Näherungsfunktion

Eine weitere Möglichkeit, die Geschwindigkeitsverteilung zu beschreiben, besteht darin, eine statistische Näherungsfunktion zu ermitteln. Im Unter-

schied zu den vorangegangenen Methoden basiert diese Näherungsfunktion nicht auf einem physikalisch begründeten und damit theoretisch ableitbaren Zusammenhang, sondern resuliert allein aus der Forderung nach Minimierung der Abweichungen der Messwerte von der Näherung. Für die Strömungsprofile erscheinen eine potenzielle sowie eine logarithmische Funktion am probatesten:

$$u = A \cdot y^B \qquad (5.49)$$

$$u = A \cdot \ln(y) + B \qquad (5.50)$$

u *Strömungsgeschwindigkeit [m/s]*
y *Wandabstand [m]*
A *Konstante, statistisch zu bestimmen*
B *Konstante, statistisch zu bestimmen*

Die Ermittlung der Konstanten A und B wird für beide Funktionstypen für die sechs aufgenommenen Strömungsprofile in Microsoft® EXCEL 2000 durchgeführt. Dieses Tabellenkalkulationsprogramm bestimmt die Konstanten A und B entsprechend der Forderung:

$$\min \stackrel{!}{\equiv} \sum_{i=1}^{n} \left(u_{Meßwert} - u_{Näherung} \right)^2$$

Um ein späteres Rechnen mit diesen statistischen Näherungsfunktionen zu erleichtern, wird der Maßstab des Wandabstandes von der Einheit mm auf m übertragen. In der folgenden Darstellung sind die Ergebnisse für die maximale Durchströmung des GPCG dargestellt:

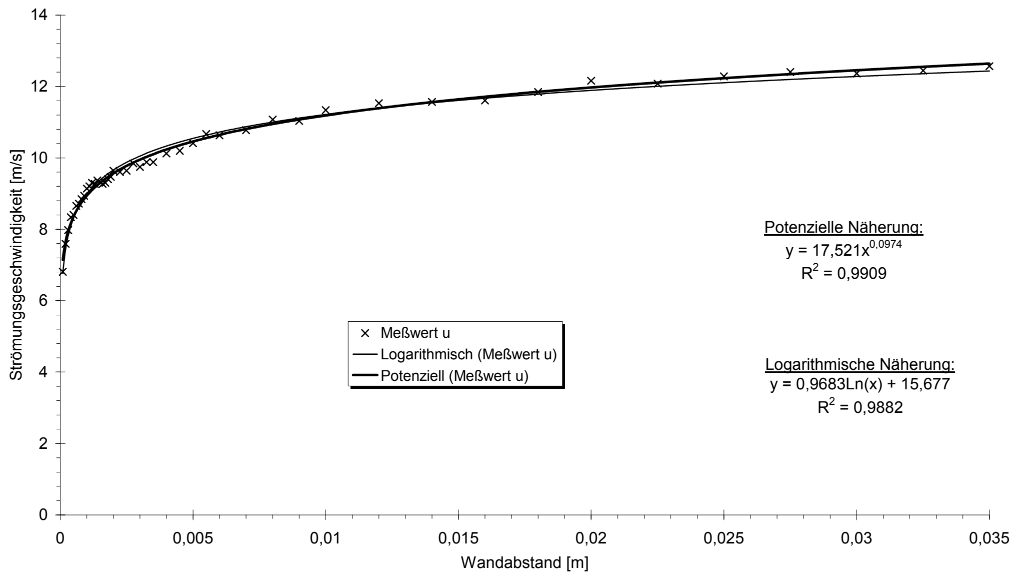


Abbildung 5-53 *Maximale Durchströmung des GPCG mit 171 m³/h*

Anhand des Korrelationskoeffizienten R^2 wird entschieden, welche der beiden Funktion 5.49 oder 5.50 geeigneter ist. Die folgende Tabelle zeigt die Ergebnisse:

Tabelle 5-16 *Koeffizienten der statistischen Näherungsfunktionen (Fettdruck = bessere Näherungsfunktion)*

	Potenzielle Funktion (4.50)			Logarithmische Funktion (4.51)		
VS-Stufe	A	B	R²	A	B	R²
19	3,7968	0,2689	0,8767	**0,1766**	**1,8905**	**0,8916**
50	8,7637	0,2091	0,9457	**0,4342**	**5,2617**	**0,9858**
71	10,151	0,1599	0,9306	**0,607**	**7,6431**	**0,9873**
94	12,301	0,1391	0,9373	**0,7314**	**9,8452**	**0,9867**
116	14,714	0,1327	0,9575	**0,8737**	**12,004**	**0,9901**
171	**17,521**	**0,0974**	**0,9909**	0,9683	15,677	0,9882

5.8.5.5 Vergleich der gemessenen Strömungsprofile mit den Resultaten der Berechnungen

Für die Berechnung des Volumenstromes anhand eines Strömungsprofils ist es entscheidend, dasjenige Geschwindigkeitsverteilungsgesetz auszuwählen, welches die höchste Richtigkeit (und damit die geringste Abweichung vom wahren Wert[180]) aufweist. Zu diesem Zweck werden für die sechs gemessenen Strömungszustände des GPCG die Geschwindigkeitsverteilungen mit dem Potenzgesetz, dem Ansatz nach Reichardt sowie den beiden statistischen Näherungen ermittelt. Die so erhaltenen Kurven werden mit den Messwerten durch Berechnung der Summe der Abweichungsquadrate verglichen und damit für jeden Strömungszustand die geeignetste Funktion bestimmt.

Alle folgenden Berechnungen basieren auf nachstehenden Zahlenwerten:

$p = 101325$ Pa	$\eta = 18{,}5 \cdot 10^{-6}$ Pa · s
$\upsilon = 23$ °C	$\rho = 1{,}186$ kg/m³
$\varphi = 45$ %	

- Re wird für die jeweilige Abluftklappenstellung mit u_{max} berechnet
- n wird gem. Gleichung 5.35 berechnet
- $\bar{u}$ wird anhand Gleichung 5.36 berechnet
- ζ wird nach Blasius mit Gleichung 5.20 berechnet

Tabelle 5-17 *Ergebnisse der Berechnungen der Strömungsprofile*

VS laut GPCG [m³/h]	u_{max} [m/s]	Re	n	$\bar{u}$ [m/s]	ζ
19	1,259	5652	6,19	1,0036	0,03648
50	3,733	16753	6,73	3,0257	0,02781
71	5,411	24283	6,92	4,4100	0,02534
94	7,193	32279	7,08	5,8864	0,02360
116	8,877	39835	7,19	7,2864	0,02239
171	12,565	56386	7,38	10,3645	0,02053

Die ausführlichen Ergebnisse dieser Berechnungen finden sich im Anhang. Aus der Gegenüberstellung der Summe der Abweichungsquadrate für die vier verschiedenen Geschwindigkeitsverteilungsgesetze wird deutlich, dass die exakteste Beschreibung der Strömungsverhältnisse mit der statistischen Näherung in Form eines logarithmischen bzw. potenziellen Zusammenhanges realisiert werden kann.

5.8.6 Bestimmung des Volumenstromes aus Geschwindigkeitsverteilung und Leitungsquerschnitt

Für die nachfolgenden Berechnungen wird folgende Nomenklatur verwendet:

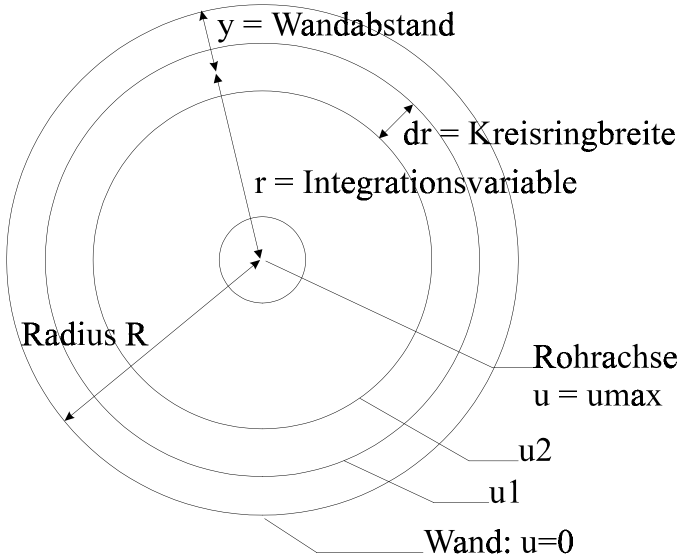


Abbildung 5-54 *Nomenklatur*

Da die Strömungsgeschwindigkeit in jedem Punkt mit gleichem Abstand zur Rohrwand identisch ist, gilt mit Gleichung 2.32 für den durch einen schmalen Kreisring strömenden Teilvolumenstrom:

$$d\dot{V} = dA \cdot u$$

Mit der inkrementellen Fläche dA des Kreisrings gemäß:

$$dA = 2\pi r dr$$

kann der betreffende inkrementelle Volumenstrom berechnet werden zu:

$$d\dot{V} = 2\pi r \cdot dr \cdot u$$

Der gesamte durch das Rohr strömende Volumenstrom ergibt sich durch Integration aller Teilvolumenströme gemäß:

$$\dot{V} = \int_0^R d\dot{V} = 2\pi \int_0^R u \cdot r \cdot dr \qquad (5.51)$$

Die Berechnung dieses Integrals erfolgt sowohl numerisch mittels Trapezregel anhand der diskreten Messwerte als auch durch Integration der verschiedenen Näherungsfunktionen*.

* *Siehe Anhang*

5.8.7 Umsetzung der Ergebnisse in die Kalibrierung des Flügelrad-anemometers

Für die Kalibrierung des Flügelradanemometers wird für jeden gemessenen Strömungszustand diejenige Volumenstromberechnung verwendet, bei welcher im Geschwindigkeitsverteilungsgesetz die Summe der Abweichungsquadrate am kleinsten ist. Die Ergebnisse der numerischen Integration sind in der nachfolgenden Zusammenstellung lediglich als Referenzwerte mit aufgeführt.

Tabelle 5-18 *Vergleich der Ergebnisse (beste Näherung jeweils in Fettdruck)*

VS laut GPCG [m³/h]	19	50	71	94	116	171
Numerischer Integration	14,388	43,929	64,872	87,079	107,641	152,111
Potenzielle Näherung	14,835	45,102	65,686	87,750	108,169	**152,168**
Logarithmische Näherung	**14,319**	**43,708**	**65,083**	**87,229**	**107,572**	152,99
Potenzgesetz	13,904	41,919	61,098	81,553	100,949	143,594
Reichardt	12,693	40,644	59,696	79,925	99,021	140,749

Aus der vorangegangenen Darstellung wird ersichtlich, dass die Kalibrierung des Flügelradanemometers nicht mit einem linearen Korrekturfaktor möglich ist. Vielmehr wird für jeden der sechs gemessenen Strömungszustände ein eigener Korrekturfaktor:

$$k' = \frac{\dot{V}_{Kalibrierwert}}{\dot{V}_{GPCG-Anzeige}} \tag{5.52}$$

errechnet.

Tabelle 5-19 *Korrekturfaktoren für die Volumenstromanzeige*

VS laut GPCG [m³/h]	19	50	71	94	116	171
VS Kalibrierwert [m³/h]	14,319	43,708	65,083	87,229	107,572	152,168
Korrekturfaktor	0,7536	0,8741	0,9166	0,9279	0,9273	0,8898

Durch eine nichtlineare Regression wird damit eine Kalibrierfunktion:

$$k' = f(\dot{V}_{GPCG-Anzeige}) \tag{5.53}$$

ermittelt. Die Berechnung wird in Microsoft® EXCEL 2000 implementiert und führt zu folgendem Resultat:

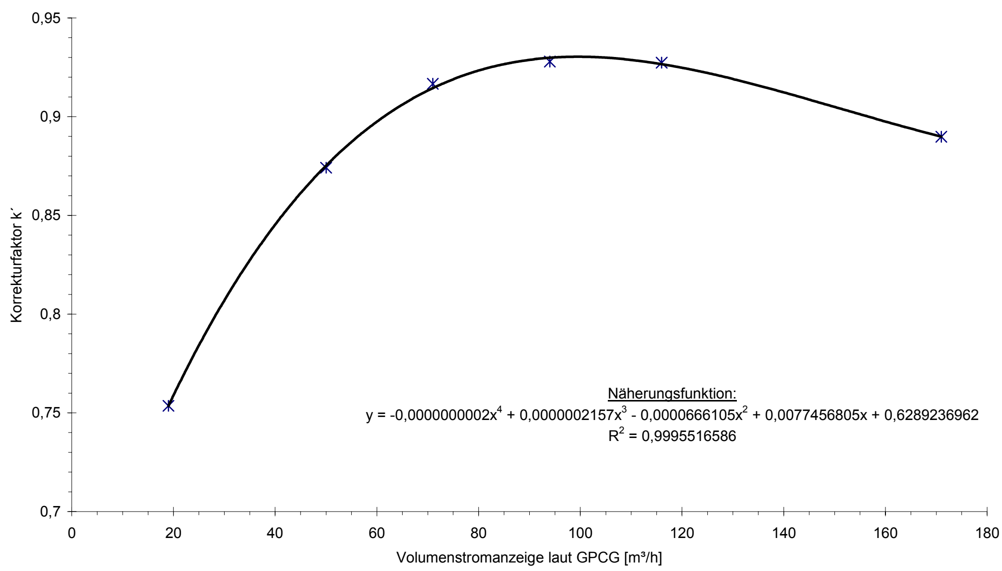


Abbildung 5-55 *Kalibrierfunktion Flügelradanemometer*

Für die Kalibrierung des Flügelradanemometers wird daher folgende Funktion verwendet:

$$x \equiv \dot{V}_{GPCG-Anzeige}$$

$$k' = -2 \cdot 10^{-10} \cdot x^4 + 2 \cdot 10^{-7} \cdot x^3 - 7 \cdot 10^{-5} \cdot x^2 + 0{,}0077 \cdot x + 0{,}6289 \qquad (5.54)$$

Die Umrechnung der „falschen“ Volumenstrommesswerte auf die „wahren“ Werte ist erst in der Messwerterfassung möglich, da der Messwertumformer des Flügelradanemometers lediglich eine unzureichende lineare Kalibrierung zulässt.

Die Beobachtung, dass der Sensor tendenziell zu hohe Messwerte liefert, steht in Übereinstimmung mit der Tatsache, dass in turbulenten Strömungsfeldern ungedämpfte Flügelradanemometer durch die auftretenden Querströmungen zusätzliche Beschleunigungen erhalten.

5.9 BESTIMMUNG DES PRESSLUFT-VOLUMENSTROMES DER SPRÜHDÜSE

Die zur Zerstäubung der Sprühflüssigkeit erforderliche Luftmenge muss für die Massenbilanzierung quantifiziert werden. Absicht ist es, den Pressluftvolumenstrom durch das Flügelradanemometer des GPCG messen zu lassen. Zu diesem Zweck wird der Ansaugstutzen des GPCG zunächst mit Klebeband luftdicht verschlossen. In die Klebebandfläche wird eine Öffnung mit der Größe der Spitze der Sprühdüse geschnitten. Die Düse wird mit einem Stativ so vor dieser Öffnung fixiert, dass sämtliche Pressluft in die leere Maschine gepumpt wird. Um ein Ansaugen von Falschluft durch den Anschluss der Sprühdüse für die Sprühflüssigkeit zu unterbinden, wird dieser Stutzen ebenfalls zugeklebt. Durch diesen Versuchsaufbau ist gewährleistet, dass die

Pressluft quantitativ durch den GPCG gepumpt und gemessen wird. Sollte im Verlauf eines Granulationsprozesses das Ansaugverhalten der Raumluft durch den Pressluftvolumenstrom beeinflusst werden, so würde dies unzweifelhaft durch das Flügelradanemometer detektiert werden.
Bei der Aufzeichnung der Volumenstrommesswerte zeigt sich eine deutliche Abhängigkeit der Messwerte von der Justierung der Sprühdüse. Da offensichtlich bei diesem Versuchsaufbau die Einlaufstrecke zu kurz ist, wird der Ansaugstutzen des GPCG um ein 1,40 m langes Rohr verlängert, dessen Ende wiederum mit Klebeband verschlossen wird und eine passende Öffnung für die Sprühdüse aufweist.

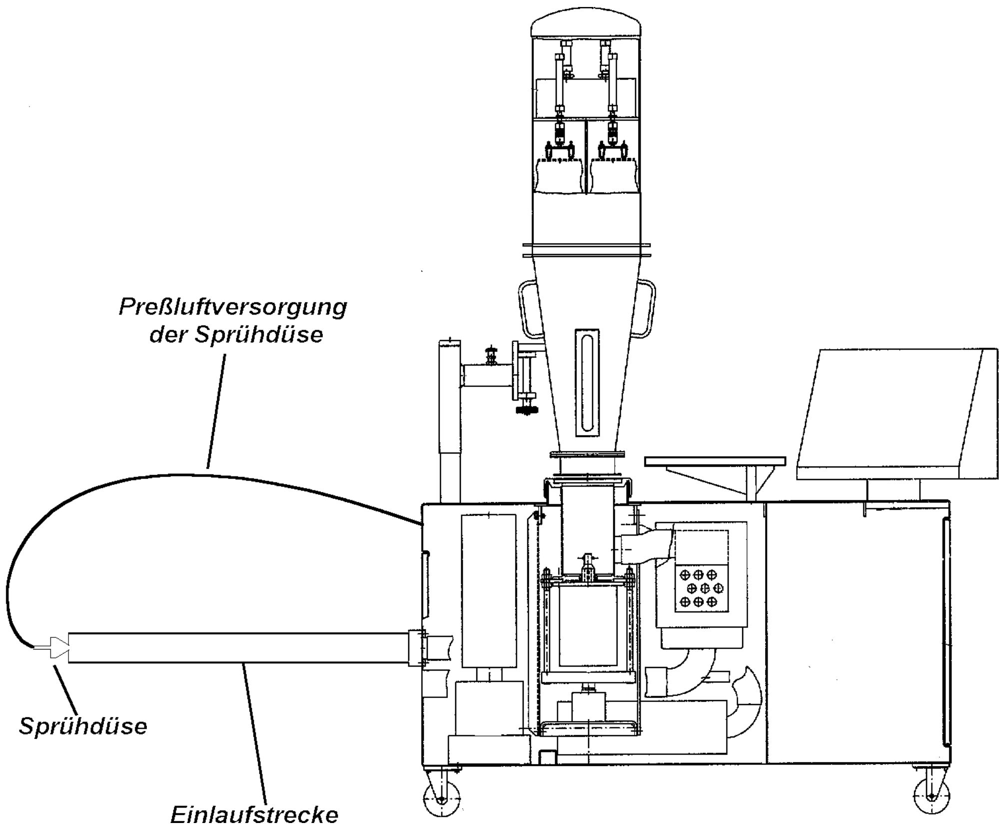


Abbildung 5-56 *Versuchsaufbau zur Messung des Pressluft-Volumenstromes*

Bei der so durchgeführten Bestimmung des Pressluftvolumenstromes ist kein Einfluß der Justierung der Sprühdüse mehr zu registieren.

Die Pressluft der Hausanlage wird in einem Lufttrockner des Typs DK 2750 V (Firma SCHNEIDER Druckluft, Reutlingen, Deutschland) durch Abkühlung der Luft bei 6 bar auf 3 °C konditioniert. Diesem Drucktaupunkt entspricht ein theoretischer Restfeuchtegehalt von 0,801 g/kg. Die experimentelle Überprüfung mit dem Frischluftfeuchtesensor liefert folgende Messwerte:

Temperatur .... : T_p = 292,15 K
Relative Luftfeuchtigkeit.. : φ_p = 6 %
Absolute Feuchte .... : χ_p = 0,81349 g/kg

Eine Messung des Pressluftvolumenstromes ist bei der vorliegenden Instrumentierung nur bei einem Sprühluftdruck größer als 1,4 bar möglich; bei kleineren Strömungsgeschwindigkeiten reagiert der Flügelradsensor nicht. Sämtliche Versuche am GPCG werden mit der Luftklappenstellung 4,5 der Zweistoffdüse durchgeführt. Wie das nachstehende Diagramm zeigt, besteht eine sehr gute lineare Korrelation zwischen dem Sprühluftdruck und dem daraus resultierenden Pressluftvolumenstrom:

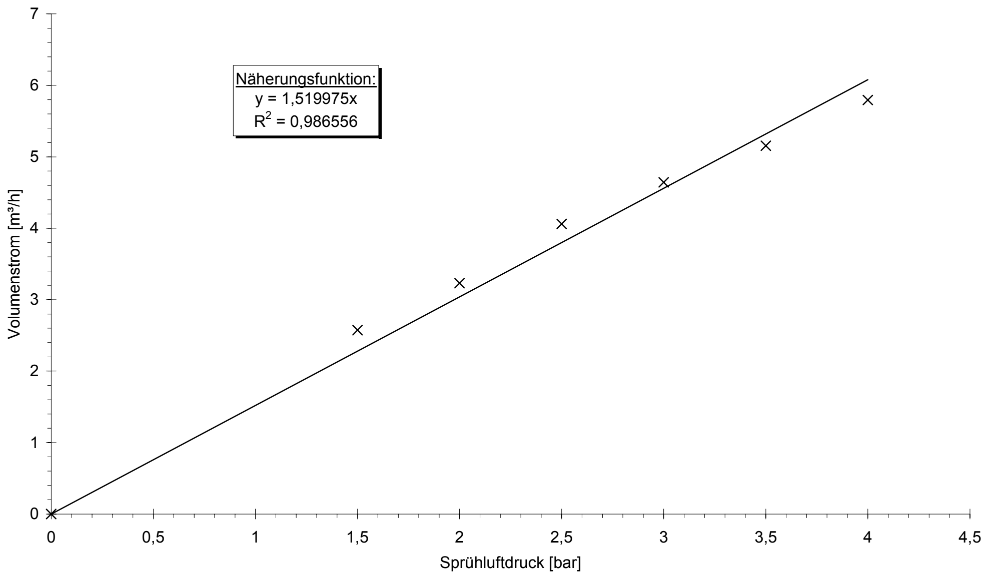


Abbildung 5-57 *Pressluftverbrauch der Sprühdüse*

Da der Zusammenhang zwischen Sprühluftdruck und Pressluftvolumenstrom eine Ursprungsgerade ist, können die Werte für p_S < 1,4 bar problemlos extrapoliert werden. Die gemessenen Daten stehen in guter Übereinstimmung mit den Herstellerangaben[181]. Der Pressluftvolumenstrom wird für Sprühluftdrucke über 1,3 bar wie folgt berechnet:

$$\dot{V}_{add} = 1{,}519975 \cdot p_s \qquad (5.55)$$

$\dot{V}_{add}$ *Pressluftvolumenstrom [m³/h]*

5.10 BESTIMMUNG DER GRÖßENVERTEILUNG DER SPRÜHFLÜSSIGKEITSTROPFEN

In der Literatur finden sich keine Untersuchungen mit der im GPCG eingebauten Zweistoffdüse, weshalb die Bestimmung der Tropfengrößenverteilung experimentell realisiert wird. Die entsprechende Messung kann in Vorversuchen außerhalb des GPCG durchgeführt werden, da davon ausgegangen wird, dass die Bildung der Bindemitteltropfen in entscheidender Weise nur von den Bedingungen an der Sprühdüse, nicht aber vom umgebenden Medium beeinflusst wird. Da sich die Brechungsindices von Luft und Sprühflüssigkeit signifikant voneinander unterscheiden, ist die Bestimmung der Sprühtropfengröße mit der Laserdiffraktometrie möglich[182, 183, 115]. Hierzu

wird die Messanordnung so gewählt, dass die Sprühdüse des GPCG im Abstand von 15 cm mittig oberhalb des Laserstrahles fixiert ist. Diese Distanz entspricht dem durchschnittlichen Abstand von Sprühdüse und Wirbelbett während eines Granulationsprozesses. Es wird die Sammellinse mit der Brennweite 100 mm verwendet. Im „Sprühtest"-Betrieb des GPCG wird der resultierende Sprühkegel für zwei Minuten der oben beschriebenen Messung unterzogen. Mit diesem Versuchsaufbau erfolgt eine integrale Erfassung der Tropfengröße des gesamten Sprühkegels.
Die Durchmesser der bei einer Zerstäubung mit einer Zweistoffdüse resultierenden Tropfen hängen von der Dichte, Viskosität und Oberflächenspannung der zu dispergierenden Flüssigkeit, der Sprührate $\dot{S}$ sowie dem Sprühluftdruck p_s ab. Da zu sämtlichen Granulationsversuchen dieser Arbeit standardmäßig eine 5 % (m/V) PVP-Granulierflüssigkeit verwendet wird, sieht das Versuchsdesign nur die Variation der Parameter Sprührate und Sprühluftdruck vor. Es wird ein 3^2-Versuchsdesign gewählt, bei welchem die Einflußgröße p_s die Werte 1, 2 und 3 bar und $\dot{S}$ die Werte 12, 24 und 36 g/min annimmt. Die folgende Abbildung zeigt die Summenverteilungen der Sprühtropfengrößen für den Sprühluftdruck 3 bar:

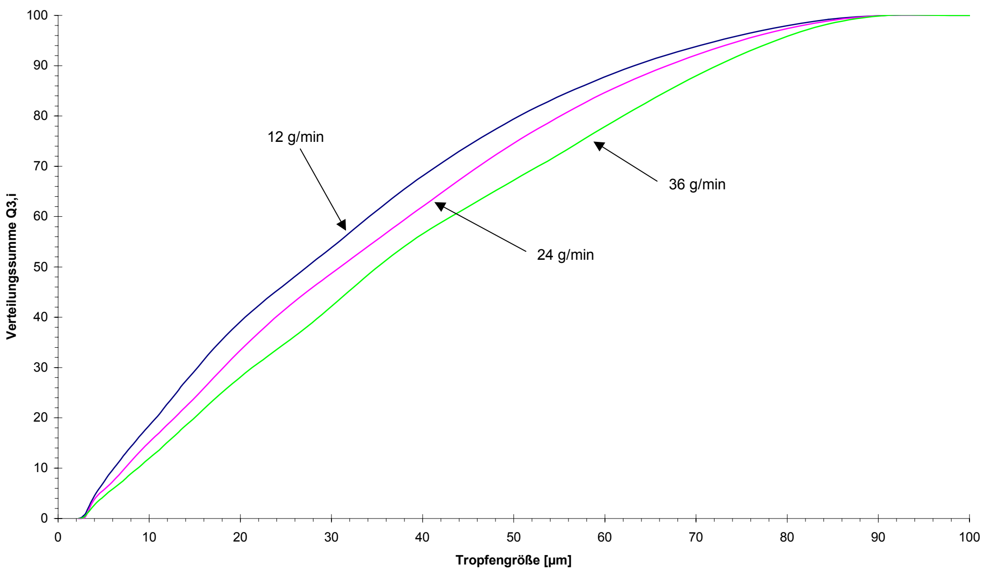


Abbildung 5-58 *Verteilungssummen der Sprühtropfengrößen bei einem Sprühluftdruck von 3 bar*

Diese Versuchsergebnisse belegen, dass kleinere Sprühraten bei gleichem Sprühluftdruck zu feineren Dispergierungen führen. Als charakteristische Sprühtropfengröße wird der **Medianwert D[v; 0,5]** definiert: Hierunter versteht man den Partikeldurchmesser, bei welchem die Verteilungssummenkurve den Wert 50 % annimmt. Der D[v; 0,5]-Wert teilt also die Partikelgrößenverteilung in zwei gleiche Hälften und wird daher auch nicht von Extremwerten der Verteilung beeinflusst*.

* *Der **Modalwert** bezeichnet diejenige Partikelgröße, die in der Verteilung am häufigsten vorkommt; er korrespondiert folglich mit dem absoluten Maximum der Verteilungsdichtefunktion*

Tabelle 5-20 Medianwerte der Sprühtropfengrößen

D[v; 0,5] in µm	12 g/min	24 g/min	36 g/min
1 bar	55,38	58,73	60,93
2 bar	38,22	41,30	47,34
3 bar	28,00	31,82	35,02

Mit der Response-surface-Technik wird unter Zuhilfenahme der SAS-Software ein Polynom zweiten Grades ermittelt, mit dem die Berechnung der mittleren Sprühtropfengröße möglich wird:

$$D[v,0.5] = A_0 + A_1 p_S + A_2 p_S^2 + A_3 \dot{S} + A_4 \dot{S}^2 + A_5 p_S \dot{S} + A_6 p_S^2 \dot{S} + A_7 p_S \dot{S}^2 + A_8 p_S^2 \dot{S}^2 \quad (5.56)$$

		Dimensionslose Koeffizienten	
D[v, 0.5]	*Medianwert der Partikelgröße [µm]*	A_0	*61,91*
p_S	*Sprühluftdruck [bar]*	A_1	*-10,155*
$\dot{S}$	*Sprührate [g/min]*	A_2	*-0,875*
		A_3	*2,00347222*
		A_4	*-0,04494213*
		A_5	*-2,10270833*
		A_6	*0,52215278*
		A_7	*0,05428819*
		A_8	*-0,01333912*

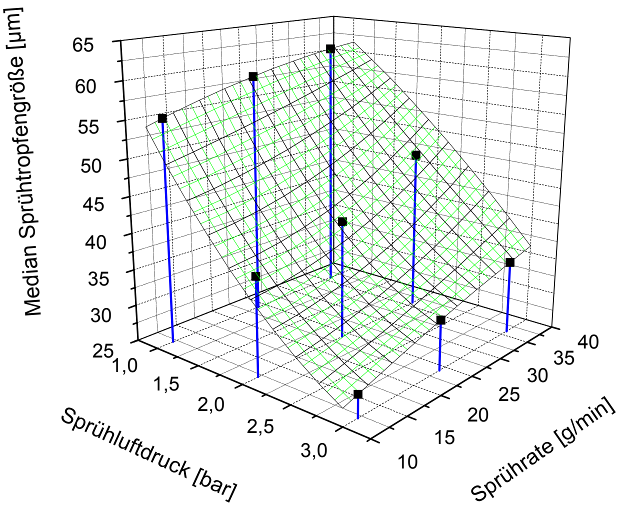


Abbildung 5-59 *Response Surface des Medianwertes der mittleren Sprühtropfengröße $R^2 = 0,9989$*

Erwartungsgemäß führt eine Erhöhung des Sprühluftdrucks zu einer sehr viel feineren Dispergierung der Bindemittellösung; die Sprühtropfengröße nimmt also ab. Eine Anhebung der Sprührate bei konstantem Sprühluftdruck führt zu geringfügig größer werdenen Sprühtropfen. Wie Abbildung 5-59 verdeutlicht ist es mit der berechneten Response Surface möglich, bei vorgegebenen Sprühbedingungen sehr präzise die zu erwartende mittlere Sprühtropfengröße zu berechnen.

5.11 TROCKNUNGSVERSUCHE

Gemäß des in der Arbeitshypothese vorgestellten Versuchsplans gilt es, in einem ersten Arbeitsabschnitt den GPCG leer zu betreiben, um das Schwanken der Sensormesswerte unter konstanten Bedingungen zu quantifizieren. Nur unter der Voraussetzung konstanter Basislinien ist später eine Massenbilanzierung möglich.

5.11.1 Leertestung der Anlage

Die Sprühdüse wird ausgebaut und deren Aufnahme mit einem Blindstopfen verschlossen. Die Anlage wird bei automatischer Regelung des Volumenstroms auf den Standardwert 75 m^3/h zunächst mit ausgeschalteter Heizung für mindestens 1,5 h gefahren. Im nächsten Versuchsschritt wird der Zulufttemperatur-Sollwert auf den Standard von 50 °C eingestellt und der GPCG mindestens 1,5 h thermisch äquilibriert. Ein weiterer Versuch wird mit der maximalen Zulufttemperatur von 80 °C unternommen.

5.11.2 Einsprühen von Wasser

Das Ziel dieser Versuchsreihe besteht darin, zum einen das Ansprechverhalten der Feuchtesensorik zu quantifizieren sowie zum anderen die Anwendbarkeit des Parameters „kritische Sprührate" $m_{sp,\ krit}$ zu überprüfen. Zu diesem Zweck wird die Sprührate derart variiert, dass sie zuerst deutlich unterhalb, dann genau beim Wert von $m_{sp,\ krit}$ und danach offensichtlich überhalb liegt. Während dieser Versuche wird durch das Langfenster im Granuliergefäß beobachtet, ob sich Wasser an der Gefäßwand niederschlägt. Die Sprühdüse ist in der oberen Sprühposition fixiert. Das gesamte Rückhaltefiltersystem wird ausgebaut, um eine Verzögerung des Abluftfeuchtesignals durch Sorptionsvorgänge des texilen Filtermaterials auszuschließen. Es wird demineralisiertes Wasser mit einem konstanten Sprühluftdruck von 3 bar eingesprüht.

5.11.3 Trocknen von feuchtem Gewebe

Das schlagartige Einbringen einer definierte Wassermasse in den Granuliereinsatz des GPCG bietet die Möglichkeit, Trocknungsverläufe isoliert zu betrachten und exakt zu quantifizieren. Es bietet sich an, Wasser durch handelsübliche Baumwollhandtücher aufsaugen zu lassen und das feuchte, gewogene Gewebe in den GPCG zu überführen. Aus der Differenzwägung am Ende der Trocknung kann genau die abgeführte Masse an Wasser bestimmt werden. Die zugefügte Wassermasse wird hierbei so bemessen, dass sie der am Ende einer Standardgranulation im Produkt befindlichen Menge entspricht. Ein Befeuchten von Gewebe mit der Sprühvorrichtung des GPCG scheidet aus, da der Stoff nicht die einem Wirbelbett entsprechende Oberfläche aufweist.

5.11.4 Befeuchten und Trocknen von Silicagel

Das Befeuchten und Trocknen im Verlauf eines Granulationsprozesses soll zunächst anhand eines einzelnen Stoffes simuliert werden, der dem Granuliergefäß sehr einfach quantitativ entnommen werden kann, um so in gänze gewogen werden zu können. Es muss folglich ein frei fließendes Schüttgut gewählt werden, das jedoch gleichzeitig eine ausreichend hohe Abriebfestigkeit aufweist. Diese Vorversuche werden daher mit Silicagel durchgeführt. Es handelt sich hierbei um ein Kieselgel in Form kleiner Kugeln, welche mit einem Feuchteïndikator imprägniert sind. Da sich deren Farbe im wasserfreien Zustand nach blau verfärbt (daher auch der Name „*Blaugel*“), kann der Endpunkt einer Trocknung bereits visuell erkannt werden. Die Versuchsbedingungen werden hier entsprechend denen des Standardgranulierprozesses gewählt: Zulufttemperatur 50 °C sowie Volumenstrom 75 m³/h

5.12 DIE STANDARD-GRANULIERMETHODE

Aufgrund des Ziels der Arbeit, einen WSG-Prozess zu beschreiben, stand die Entwicklung verschiedener Granulatrezepturen nicht im Vordergrund. Vielmehr wurde zu Beginn der Arbeit eine Standard-Rezeptur erarbeitet, die folgenden Anforderungen entspricht:

- toxikologisch unbedenklich (wirkstofffrei)
- einfach und sicher in der Durchführung
- kurze Prozesszeit
- preiswert in Bezug auf die verwendeten Hilfsstoffe
- tablettierbar (gute Kompressionseigenschaften)
- möglichst unabhängig von Witterungseinflüssen granulierbar
- möglichst geeignet als Basis für eine spätere Einbindung beliebiger Wirkstoffe

Am Ende des Entwicklungsprozesses stand folgende Granuliermethode:

Bindemittellösung		
Polyvinylpyrrolidon 90	*Kollidon 90 F (BASF)*	50 g
Aqua purificata		1000 g

In ein auf der Waage Mettler PM 4000 austariertes 250 ml Becherglas wird das Kollidon 90 F eingewogen. Danach wird ein 1000 ml Becherglas mit Rührfisch auf der selben Waage tariert. In diesem Gefäß werden ca. 800 g frisch abgekochtes demineralisiertes Wasser vorgelegt. Unter Rühren auf dem Magnetrührer wird sukzessive das Kollidon 90 F aufgestreut und eingearbeitet. Das Wasser wird bis zu Sollmasse ergänzt und abschließend nochmals durchgerührt. Es entsteht eine farblose, klare Lösung.
Mit der Einstellung „Sprühtest“ am GPCG wird der Zuleitungsschlauch bis zur Sprühdüse hin gefüllt, so dass nach Beginn des eigentlichen Granulationsprozesses bei Einschalten der Sprühpumpe sofort mit dem Eintrag von

Bindemittellösung in den Ansatzbehälter begonnen wird. Die Sprühdüse selbst bleibt zunächst frei von Bindemittellösung, da anderenfalls während der einleitenden Mischphase Verstopfungen des Düsenausganges möglich sind. Das Totvolumen der Sprühdüse ist experimentell ermittelt worden.

Primärpartikeln		
Lactose Monohydrat	*Granulac 200 (Meggle)*	970 g
Quervernetztes PVP	*Polyplasdone XL (ISP)*	30 g

Die beiden Pulver werden in einer auf der Waage Mettler P 2000 N tarierten Schüssel eingewogen und quantitativ in den Ansatzbehälter des GPCG überführt.

Der Granulationsprozess wird in drei Phasen durchgeführt:

Phase 1: *Äquilibrieren der Anlage und Mischen des Schüttgutes*
- Zeitansatz 2 x 15 min
- Zulufttemperatur 50 °C
- Volumenstrom 75 m^3/h
- Freiblasdruck der Sprühdüse 1,5 bar
- Zunächst Anlage 15 min thermisch äquilibrieren lassen, so dass stabile Basislinien der Messwerte erreicht werden
- Kurze Prozessunterbrechung zum Befüllen der Anlage
- 15 min Aufwärmen und Mischen des Pulvers

Phase 2: *Granulation*
- Zeitansatz 30 min
- Zulufttemperatur 50 °C
- Volumenstrom 75 m^3/h
- Sprühpumpenleistung 40 Skalenteile
- Sprühluftdruck 1,5 bar
- Eventuelle Pulverpartikel-Anheftungen an der Gefäßwand mit leichten Schlägen eines Gummihammers auf das Granulationsgefäß lösen

Phase 3: *Trocknen des Granulates*
- Prozessende, sobald der Feuchtegehalt der Abluft das Niveau von Ende Phase 1 erreicht hat
- Zulufttemperatur 70 °C
- Volumenstrom 75 m^3/h

Das entstandene Granulat wird sofort durch ein Sieb der Maschenweite 1000 µm gesiebt; der Durchgang wird in Schraubgefäße abgefüllt. Das Produkt wird im folgenden als **Standardgranulat** bezeichnet.

5.13 PROBENAUFGABE FÜR GRANULATE AM MALVERN PARTICLE SIZER®

Aufgrund der guten Lösungseigenschaften der verwendeten Hilfsstoffe müssen nasse Bestimmungsverfahren des Standardgranulats (wie z.B. Nasssiebung oder Dispergierungen) ausgeschlossen werden. Die Ermittlung der Partikelgrößenverteilung am Ende eines Granulationsprozesses kann problemlos mit einer Siebanalyse durchgeführt werden. Um die Änderung der Korngrö-

ßenverteilung im Verlauf einer solchen Herstellung zu verfolgen, müssen während des laufenden Betriebes des GPCG Proben gezogen werden. Ein Probenzug am GPCG erlaubt die Entnahme von ca. 5 ml Probenvolumen; eine Siebanalyse ist mit einer solch geringen Menge nicht durchführbar. Aus diesem Grund ist eine modifizierte Laserstreulichtbestimmung entwickelt worden.

Der Laser-Granulometer ParticleSizer® 2600 ermöglicht mit dem Trockenprobengeber PS 64 die Bestimmung der Partikelgrößenverteilung eines Schüttgutes nach dessen Dispergierung in strömender Luft. Hierzu wird die Pulverprobe auf einer Vibrationsrinne aufgebracht. Durch die stufenlose Regelung der Vibrationsfrequenz sowie der Änderung der Spaltbreite der Rinnenöffnung wird der Pulverfluß gesteuert. Das Schüttgut fällt von der Rinne zunächst auf einen grobmaschigen Drahteinsatz. Der Durchgang durch dieses Sieb wird danach von einem Luftsog mitgerissen, der durch seitlich eintretende regelbare Druckluft (0,5 bis 4 bar) gebildet wird. Da die Partikeln hierbei ein Rohrsystem mit drei rechten Winkeln passieren und nahezu auf Schallgeschwindigkeit beschleunigt werden, können größere Agglomerate regelrecht aufgerieben werden. Die Austrittsöffnung am Ende des Rohrsystems ist so justiert, dass die im Luftstrom dispergierten Partikeln den Laserstrahl senkrecht passieren. Ein Metalltrichter, an dem ein Staubsauger angeschlossen ist, fängt die Partikeln schließlich auf und ermöglicht somit eine relativ staubfreie Messung.

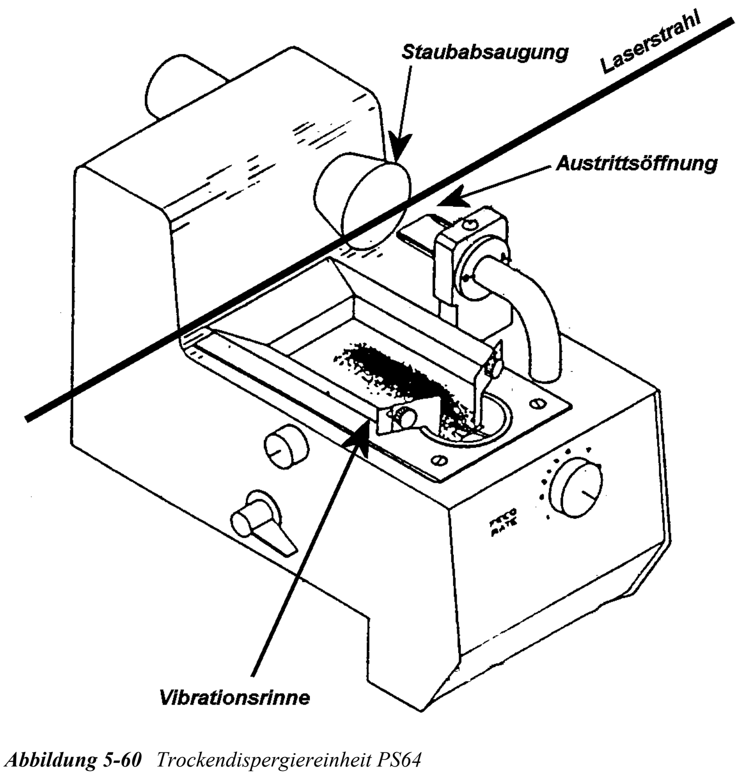


Abbildung 5-60 *Trockendispergiereinheit PS64*

Während die Förderrate des Pulvers ein unkritischer Betriebsparameter ist[184], wurde in Vorversuchen ermittelt, dass der Pressluftdruck das Versuchser-

gebnis immens beeinflusst: Je höher die Strömungsgeschwindigkeit gewählt wird, desto stärker ist die mechanische Belastung der Partikeln und desto mehr wird Abrieb von der Oberfläche bzw. Aufbrechen lockerer Agglomerate beobachtet. Die folgende Abbildung zeigt die mit dem PS 64 bestimmte mittlere Partikelgröße des selben Schüttgutes (Standardgranulat) in Abhängigkeit vom verwendeten Pressluftdruck:

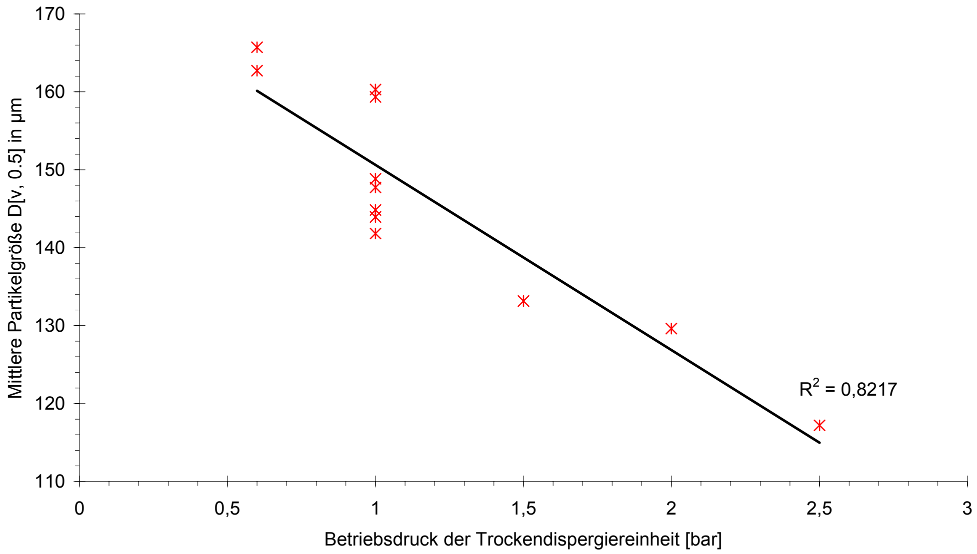


Abbildung 5-61 *Einfluß des Pressluftdrucks PS64 auf das Messergebnis*

Dieses Versuchsergebnis verdeutlicht die Notwendigkeit einer schonenderen Schüttguteinbringung in die Messstrecke des ParticleSizers. Da es zu Beginn dieser Arbeit außer der für die Messung des Standardgranulates ungeeigneten Nassdispergierung kein alternatives Probenaufgabesystem auf dem Markt gab, wurde eine eigene Methode entwickelt. Die Probe wird auf eine elektromagnetisch betriebene Vibrationsrinne aus poliertem Aluminiumblech mit der Länge 25 cm und der Breite 2 cm gegeben. Das Ende dieser Rinne wird 10 cm oberhalb des Lasermessstrahls des ParticleSizers justiert. Die Probenpartikeln werden hierbei allein durch die Schwerkraft beschleunigt.

Abbildung 5-62 *Rinnenbestimmung mit Malvern Particle Sizer® 2600*

Im Gegensatz zum PS 64 erfolgt weder Abrieb noch Bruch von Partikeln. Da das zu vermessende Schüttgut die Messstrecke viel langsamer als bei der Dispergierung mit Pressluft passiert, ist eine deutlich geringere Probenmenge von ca. 0,5 g ausreichend. Die Justierung der Vibrationsrinne ist unkritisch.
Da es durch die Vibrationen der Rinne zu einer Trennung des aufgegebenen Schüttgutes in verschiedene Korngrößenklassen kommen kann, ist es erforderlich, die Messzeit so zu wählen, dass jeweils das gesamte Probenvolumen erfasst wird. Bei zu kurzer Messdauer werden nur die größeren Partikeln erfasst, da diese die Rinne zuerst verlassen:

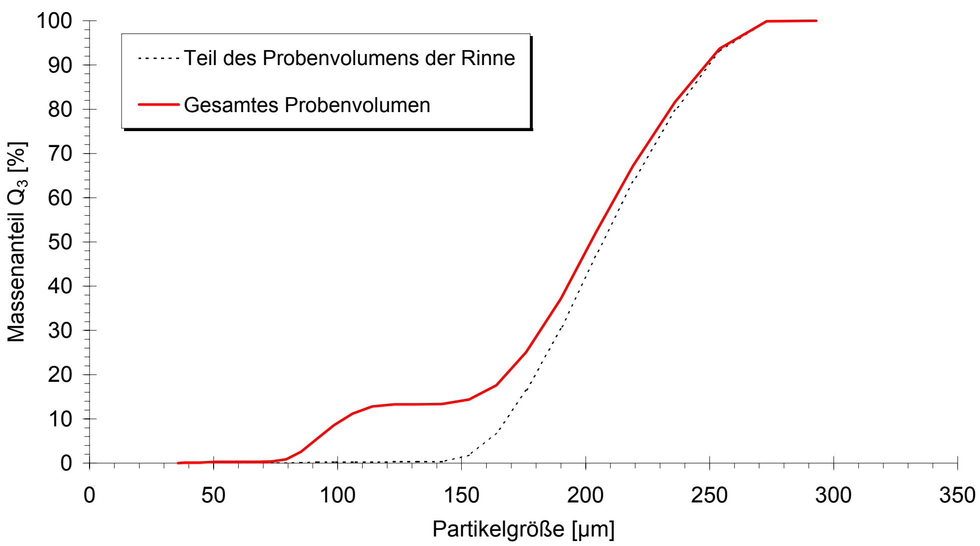


Abbildung 5-63 *Trennung des Schüttgutes auf der Vibrationsrinne (Standardgranulat)*

Sofern nicht explizit anders angegeben werden alle Partikelgrößenbestimmungen in dieser Arbeit mit dem beschriebenen Versuchsaufbau durchgeführt. Je mehr die Partikeln von der Kugelform abweichen, desto breiter erscheint die mittels LSA bestimmte Partikelgrößenverteilung[185]. Wie die rasterelektronenmikroskopischen Aufnahmen des Standardgranulats verdeutlichen, können die in dieser Arbeit zu vermessenden Partikeln mit guter Näherung als sphärisch angesehen werden. Um die Korngrößenverteilung des Schüttgutes im Verlauf der Granulation zu verfolgen, werden mit dem Probenziehen erhaltene feuchte Proben auf Porzellanschälchen überführt und sofort im Trockenschrank (Memmert GmbH & Co KG, Schwabach, Deutschland) über drei Stunden bei 60 °C getrocknet. Hierdurch werden Sekundäragglomerationen verhindert. Die Proben werden ebenfalls nach der Standardmethode vermessen.

6 Ergebnisse

6.1 Theorie der Massenbilanzierung

Für die Berechnung der Massenbilanzierung ist die Kenntnis etlicher Parameter notwendig, deren Berechnung im Folgenden dargelegt wird.

6.1.1 Ermittlung der Sättigungsdampfdruckkurve von Wasser

Über einem Flüssigkeitsspiegel in einem isolierten Gefäß bildet sich nach Einstellen eines Gleichgewichts ein stoffspezifischer und temperaturabhängiger Dampfdruck aus. Der funktionelle Zusammenhang zwischen Sättigungsdampfdruck und Temperatur wird entsprechend der Boltzmann-Verteilung der kinetischen Energie der Flüssigkeitsmoleküle beschrieben[186,187] gemäß:

$$P_D = b \cdot e^{-\frac{W}{RT}} \qquad (6.1)$$

P_D *Sättigungsdampfdruck [Pa]*
b *Konstante*
W *Molare Verdampfungsenergie [J mol-1]*
R *Universelle Gaskonstante 8,314 J K-1 mol-1*
T *Absolute Temperatur [K]*

Messwerte des Sättigungsdampfdrucks von Wasser können einschlägiger Literatur entnommen werden[188]. Zur Bestimmung der Koeffizienten wird Gleichung 6.1 zunächst logarithmiert:

$$\ln P_D = -\frac{W}{R} \cdot \frac{1}{T} + \ln b \qquad (6.2)$$

und mit den Wertepaaren $\ln P_D(1/T)$ eine lineare Regression durchgeführt. Aus der so erhaltenen sogenannten **Augustusschen Formel** lässt sich zusätzlich die molare Verdampfungsenergie ermitteln.

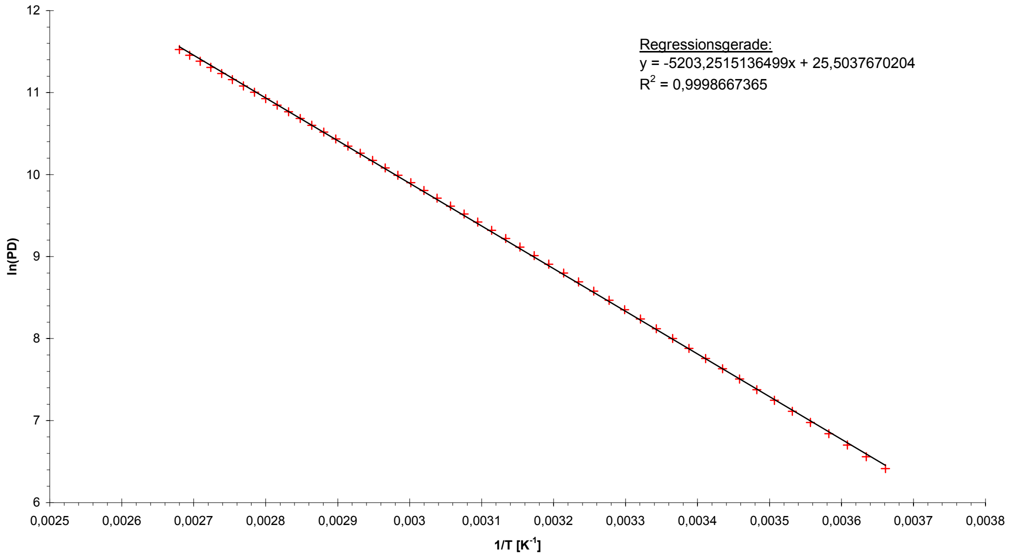


Abbildung 6-1 *Augustussche Formel*

Die Kalibriergerade hat dabei die Gleichung:

$$\ln P_D = -5203{,}2515136499 \cdot \frac{1}{T} + 25{,}5037670204 \qquad (6.3)$$

Durch Auflösen dieser Gleichung nach P_D erhält man:

$$P_D = 119164058100 \cdot e^{-5203{,}2515135499 \cdot \frac{1}{T}} \qquad (6.4)$$

Der Sättigungsdampfdruck über Wasser kann auch mit der empirischen Formel von MAGNUS berechnet werden, bei welcher die Funktion ausgehend vom Sättigungsdampfdruck bei 0 °C von 610,78 Pa konstruiert wird:

$$P_D = 610{,}78 \cdot 10^{\frac{7{,}5 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}} \qquad (6.5)$$

ϑ *Temperatur [°C]*

Von der Firma GLATT ist zur Vereinfachung der Programmierung die Umrechnung vom dekadischen in den natürlichen Logarithmus durchgeführt worden[189]. Gemäß:

$$10^x = \left(e^{\ln 10}\right)^x = e^{x \cdot \ln 10} \qquad (6.6)$$

gilt somit für den Sättigungsdampfdruck über Wasser:

$$P_D = 610{,}78 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}} \qquad (6.7)$$

Eine weitere Möglichkeit der Berechnung des Sättigungsdampfdruckes von Wasser wurde 1980 im Rahmen eines Forschungsprojekts der American Society of Heating, Refrigerating and Air Conditioning Engineers (ASHRAE) von WEXLER und HYLAND publiziert[190]. Demzufolge gilt für den Sättigungsdampfdruck P_D:

$$\ln(P_D) = \frac{a}{T} + b + c \cdot T + d \cdot T^2 + e \cdot T^3 + f \cdot \ln(T) \qquad (6.8)$$

mit den Koeffizienten

a = -5800,2206
b = 1,3914993
c = -0,048640239
d = 0,41764768 * 10^{-4}
e = -0,14452093 * 10^{-7}
f = 6,5459673

Um eine Aussage über die Güte der drei Berechnungsformeln treffen zu können, werden die Ergebnisse der entsprechenden Berechnung diskreter Werte im Temperaturintervall 0 °C bis 100 °C mit den in der Literatur aufgeführten Werten verglichen*. Bereits der graphische Vergleich der Ergebnisse der drei Berechnungsverfahren liefert den Beweis für die Überlegenheit der ASHRAE-Formel:

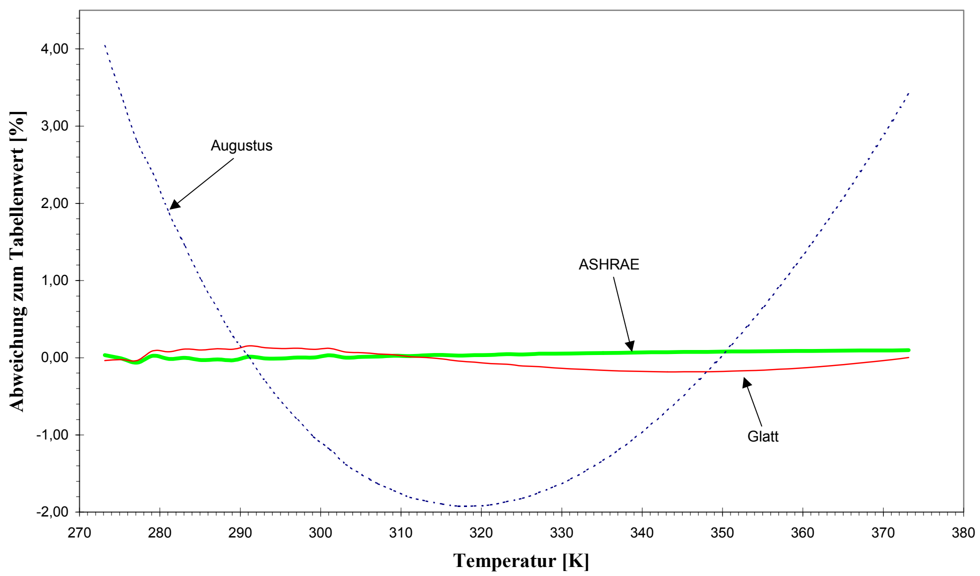


Abbildung 6-2 *Vergleich der Richtigkeit der Näherungsformeln*

Im Folgenden werden daher die Berechnungen des Sättigungsdampfdrucks des Wassers anhand der ASHRAE-Formel durchgeführt.

* *Siehe Anhang*

6.1.2 Berechnung der Dichte feuchter Luft

Die Dichte ρ feuchter Luft setzt sich additiv aus den Partialdichten von trockener Luft und Wasserdampf zusammen[191]:

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{m_L + m_w}{V} = \rho_L + \rho_w \qquad (6.9)$$

m_L *Masse trockener Luft*
m_w *Masse Wasser*
ρ_L *Partialdichte trockener Luft*
ρ_w *Partialdichte des Wasserdampfes*

Aus dem allgemeinen Gasgesetz gemäß Gleichung 2.20

$$pV = nRT$$

und der Definition der molaren Masse gemäß Gleichung 2.23

$$M = \frac{m}{n}$$

folgt:

$$\frac{m}{V} = \frac{p \cdot M}{R \cdot T} \qquad (6.10)$$

Die Berechnung der spezifische Gaskonstante eines beliebigen Gases erfolgt gemäß Gleichung 2.24 zu:

$$R_i = \frac{R}{M_i}$$

Folglich gilt für die hier interessierenden Gasgemische:

Luft: $$R_L = \frac{8{,}314\, J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}}{28{,}964\, g \cdot mol^{-1}} = 0{,}287\, J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}$$

Wasser: $$R_W = \frac{8{,}314\, J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}}{18{,}016\, g \cdot mol^{-1}} = 0{,}461\, J \cdot g^{-1} \cdot K^{-1}$$

Aus Gleichung 6.9 mit 6.10 resultiert:

$$\rho_i = \frac{m}{V} = \frac{p_i}{R_i \cdot T}$$

Es gilt folglich für die Dichte ρ feuchter Luft:

$$\rho = \frac{p_L}{R_L T} + \frac{p_W}{R_w T} \qquad (6.11)$$

p_L *Partialdruck trockener Luft [Pa]*
p_w *Partialdruck des Wasserdampfes [Pa]*

Die Summe der Partialdrucke von trockener Luft und Wasserdampf entspricht dem Gesamtdruck p:

$$p = p_L + p_W$$

In Gleichung 6.11 kann daher der Partialdruck trockener Luft ersetzt werden durch nachstehenden Ausdruck:

$$p_L = p - p_W \qquad (6.12)$$

Es gilt folglich:

$$\rho = \frac{p - p_W}{R_L T} + \frac{p_W}{R_w T}$$

$$\rho = \frac{R_W (p - p_W) + R_L p_W}{R_W R_L T}$$

$$\rho = \frac{R_W p - R_W p_W + R_L p_W}{R_W R_L T}$$

$$\rho = \frac{p}{R_L T} \cdot \left(1 - \frac{p_W}{p} + \frac{R_L p_W}{p R_W}\right)$$

$$\rho = \frac{p}{R_L T} \cdot \left[1 - \frac{p_W}{p}\left(1 - \frac{R_L}{R_W}\right)\right]$$

Das Verhältnis der beiden Gaskonstanten hat den Wert:

$$\frac{R_L}{R_W} = \frac{M_W}{M_L} = \frac{18{,}016\ g/mol}{28{,}96\ g/mol} = 0{,}62209$$

Durch Einsetzen dieses Zahlenwertes in obige Gleichung erhält man somit:

$$\rho = \frac{p}{R_L T} \cdot \left(1 - 0{,}3779 \frac{p_W}{p}\right) \qquad (6.13)$$

ρ *Dichte feuchter Luft [kg/m³]*
p *Gesamtdruck [Pa]*
R_L *0,28706 kJ kg^{-1} K^{-1}*
T *Absolute Temperatur [K]*
p_W *Wasserdampfpartialdruck [Pa]*

Da der Term $p \cdot (R_L \cdot T)^{-1}$ der Dichte trockener Luft entspricht, ist aus dieser Gleichung ersichtlich, dass feuchte Luft leichter als trockene Luft ist.

Das folgende Diagramm verdeutlicht den Einfluß der Parameter Temperatur und relative Luftfeuchtigkeit auf die Dichte der feuchten Luft, berechnet für den in Würzburg durchschnittlichen Luftdruck von 98.600 Pa:

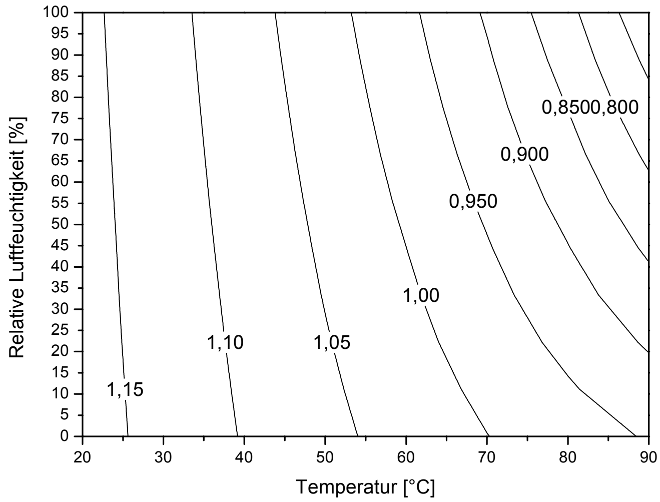


Abbildung 6-3 *Dichte feuchter Luft für p = 98.600 Pa*

Es ist ersichtlich, daß der Einfluss der relativen Luftfeuchtigkeit auf die Dichte der Luft insbesondere bei hohen Temperaturen deutlich zunimmt.
Um den Wertebereich von ρ für die vorliegende experimentelle Problemstellung zu ermitteln, wird mit Gleichung 6.13 die Dichte der feuchten Luft für den maximalen Druck von 101.325 Pa sowie für den niedrigsten zu erwartenden Druck von 70.000 Pa berechnet.

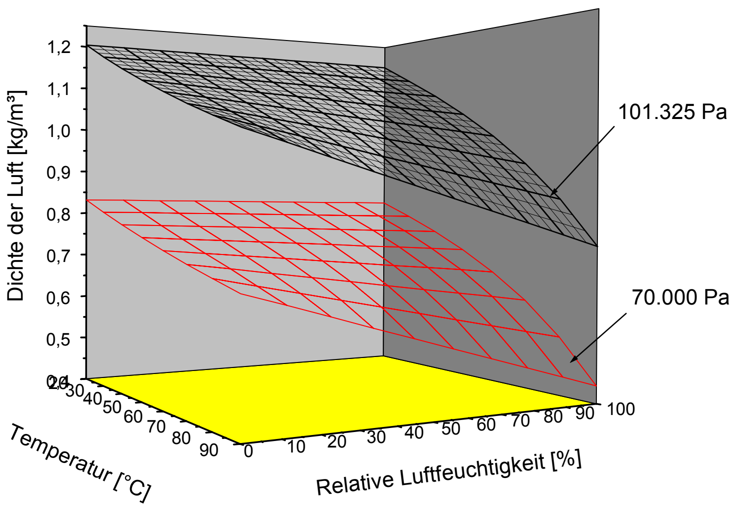


Abbildung 6-4 *Wertebereich der Dichte feuchter Luft*

Dieser Graphik kann entnommen werden, dass die Dichte der feuchten Luft im GPCG zwischen 0,4 und 1,2 kg/m³ variieren kann.

6.1.3 Berechnung der Taupunkttemperatur

Das Abluftrohr, in welchem der Abluftfeuchtesensor installiert ist, ist aus Edelstahl gefertigt. Die Rohrwand ist im Verhältnis zur heißen Abluft kalt. Falls die feuchtigkeitsbeladene Abluft an dem relativ kühlen Metall kondensieren würde, könnte diese Masse nicht vom Abluftfeuchtesensor erfasst werden, und die Massenbilanzierung würde einen scheinbar zu geringen Wasseraustrag aus der Anlage ergeben. Um die Gewissheit zu haben, dass eine derartige Wasserkondensation unmöglich ist, wird die Taupunkttemperatur der Abluft berechnet. Sofern die Rohrwandtemperatur oberhalb dieses Wertes liegt, kann Kondensation sicher ausgeschlossen werden.

Durch Einsetzen der Definition der relativen Luftfeuchtigkeit gemäß Gleichung (2.14) in die Berechnungsgrundlage des Feuchtigkeitsgehalts (2.26) folgt:

$$\varphi = \frac{\chi \cdot p}{p_D \cdot (622 + \chi)} \tag{6.14}$$

Am Taupunkt beträgt die relative Luftfeuchtigkeit genau 100 %. Durch Einsetzen der Glatt Näherungsformel für p_D (6.7) und φ=1 in (6.14) wird folgende Gleichung erhalten:

$$610{,}76 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta_{Tau}}{234{,}175 + \vartheta_{Tau}}} = \frac{\chi \cdot p}{622 + \chi}$$

ϑ_{Tau} Taupunkttemperatur [°C]

Durch Auflösen nach ϑ_{Tau} wird ein Term erhalten, der die direkte Berechnung der Taupunkttemperatur erlaubt:

$$\vartheta_{Tau} = \frac{234{,}175}{\dfrac{17{,}08085}{\ln\left(\dfrac{\chi \cdot p}{610{,}76 \cdot (622 + \chi)}\right)} - 1}$$

Dieser Term wird weiter zusammengefasst zu:

$$\vartheta_{Tau} = \frac{234{,}175 \cdot \ln\left(\dfrac{\chi \cdot p}{610{,}76 \cdot (622 + \chi)}\right)}{17{,}08085 - \ln\left(\dfrac{\chi \cdot p}{610{,}76 \cdot (622 + \chi)}\right)} \tag{6.15}$$

6.1.4 Berechnung der Massenbilanzierung

Ausgangspunkt der Erstellung einer Massenbilanzierung ist Gleichung (3.1). Im Folgenden wird die inkrementelle Berechnung für den konkreten Fall der vorliegenden Messwerterfassung aufgezeigt. Die LabView-Software zeichnet die Messwerte in Takten von jeweils Δt= 5 Sekunden auf. Die Berechnung der Massenbilanzierung erfolgt separat in einem Microsoft EXCEL® 2000 Arbeitsblatt. Das erste Zeitintervall i = 1 umfaßt die ersten fünf Sekunden ab Beginn der Messwerterfassung. Die nachstehende Berechnung der Massenbilanzierung beschreibt die Änderungen während eines derartigen Zeitabschnittes i. Es werden dabei jeweils die Volumenelemente berücksichtigt, die in einem solchen Zeitintervall durch den GPCG gefördert werden.

6.1.4.1 Eintrag von Wasser durch die Frischluft

Ausgehend von der Definition des Feuchtigkeitsgehaltes χ gemäß (2.17)

$$\chi = \frac{m_w}{m_{TL}} \qquad \text{[g/kg]} \qquad (2.17)$$

resultiert die Gesamtmasse an feuchter Luft m_{ges}, die in einem Volumenelement enthalten ist, aus der Summe:

$$m_{ges} = m_w + m_{TL} \qquad (6.16)$$

Die Absicht besteht nun darin, einen Ausdruck zu finden, der die Masse an Wasser in einem Volumenelement feuchter Luft beschreibt. Auflösen von (2.17) nach m_{TL} und Einsetzen in (6.16) ergibt:

$$m_w + \frac{m_w}{\chi} = m_{ges}$$

Auflösen nach m_W:

$$m_w = \frac{m_{ges}}{1 + \frac{1}{\chi}} \qquad (6.17)$$

Mit der allgemeinen Definition der Dichte gemäß:

$$\rho = \frac{m}{V} \qquad (6.18)$$

resultiert aus 6.17:

$$m_{ges} = \rho \cdot V \qquad \Rightarrow \qquad m_w = \frac{\rho \cdot V}{1 + \frac{1}{\chi}} \qquad (6.19)$$

Das Volumen feuchter Luft, welches im Zeitintervall Δt von der Maschine angesaugt wird, ergibt sich aus der Definition des Volumenstroms in Gleichung 2.31 zu:

$$V = \dot{V} \cdot \Delta t \qquad (6.20)$$

Für einen Zeittakt von 5 Sekunden gilt nach Umrechnung auf die Zeiteinheit Stunde somit:

$$V = \dot{V} \cdot \frac{5}{60 \cdot 60}$$

$$V = \frac{\dot{V}}{720} \qquad (6.21)$$

Aus (6.19) und (6.21) resultiert die Berechnungsformel für die Masse an Wasser $m_{F,i}$, die mit der Frischluft im Zeitintervall i mit Δt = 5 s durch die Maschine angesaugt wird:

$$m_{F,i} = \frac{\rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)} \qquad (6.22)$$

$\dot{V}_{in}$	*Volumenstrom im Ansaugstutzen des GPCG [m³/h]*
ρ_{in}	*Dichte der feuchten Frischluft [kg/m³]*
$m_{F,i}$	*Wassereintrag durch Frischluft im Zeitintervall i [g]*

Zur Beachtung:

- Da der Feuchtigkeitsgehalt die Einheit g/kg hat, ist der Zahlenwert von χ beim Einsetzen in diese Formel durch 1000 zu dividieren
- $m_{F,i}$ ist definitionsgemäß in g anzugeben

<u>Beispiel:</u>
(Zahlenwerte aus Batchreport von Experiment 0193 12 Minuten nach Prozessbeginn)

$\dot{V}_{in,GPCG} = 77\, m^3/h$

φ_{in} = 37,5 %

χ_{in} = 9,1 g/kg

T_{in} = 298,85 K

P = 97.300 Pa

Wasserdampfsättigungsdruck gemäß (6.5): P_D =3303,9 Pa

Wasserdampfpartialdruck gemäß (2.14): P_W = 0,375 · 3303,9 Pa
P_W = 1239,0 Pa

Somit ergibt sich gemäß (6.13) eine Dichte von:

$$\rho_{in} = \frac{97300\,Pa}{287{,}06\,Jkg^{-1}K^{-1} \cdot 298{,}85\,K} \cdot \left(1 - 0{,}3779\frac{1239\,Pa}{97300\,Pa}\right)$$

$$\rho_{in} = 1{,}13419\frac{Pa}{Nm \cdot kg^{-1}} \cdot (0{,}9951878)$$

$$\rho_{in} = 1{,}1287\frac{kg}{m^3}$$

Der effektive Volumenstrom wird mit Gleichung 5.54 errechnet:

$$k' = -2 \cdot 10^{-10}(77)^4 + 2 \cdot 10^{-7}(77)^3 - 7 \cdot 10^{-5}(77)^2 + 0{,}0077 \cdot 77 + 0{,}6289$$

k´ = 0,8910

$$\dot{V}_{in} = 68{,}61\,m^3/h$$

Damit resultiert die in 5 s eingetragene Wassermasse nach (6.22) zu:

$$m_{F,i} = \frac{1{,}1287\,kg/m^3 \cdot 68{,}61\,m^3/h}{720\,h^{-1} \cdot \left(1 + \frac{1000}{9{,}1}\right)}$$

$m_{F,i}$ = 9,6993 ·10^{-4} kg

$m_{F,i}$ = 0,970 g

6.1.4.2 Eintrag von Wasser durch die Sprühflüssigkeit

Die Masse Sprühflüssigkeit, die im Zeitintervall Δt= 5 s eingetragen wird, ergibt sich aus der Differenz der Masse im Ansatzgefäß zu Anfang und Ende des Zeitraums. Sofern eine wässrige Lösung als Sprühflüssigkeit verwendet wird, muss noch der Anteil Bindemittel aus dieser Masse herausgerechnet werden. Es gilt:

$$m_{Gesamt} = m_{Wasser} + m_{Bindemittel} \qquad (6.23)$$

m_{Wasser} *Masse Wasser in der Bindemittellösung [g]*
$m_{Bindemittel}$ *Masse Bindemittel in der Bindemittellösung [g]*
m_{Gesamt} *Gesamtmasse Bindemittellösung [g]*

Für den Massenbruch W_{WB} gilt:

$$W_{WB} = \frac{m_{Wasser}}{m_{Gesamt}} \qquad (6.24)$$

$$W_{WB} = 1 - \frac{m_{Bindemittel}}{m_{Gesamt}} \quad (6.25)$$

W_{WB} *Massenbruch Wasser in der Bindemittellösung [%]*

Für die im Zeitintervall Δt= 5 s eingetragene Wassermasse gilt damit:

$$m_{S,i} = W_{WB} \cdot (m_{Sprühflüssigkeit\ vor\ 5\ sec} - m_{Sprühflüssigkeit\ jetzt}) \quad (6.26)$$

6.1.4.3 Eintrag von Wasser durch die Pressluft

Der Pressluft-Volumenstrom wird in Abhängigkeit vom Sprühluftdruck so berechnet, als würde das Sprühen in eine leere Maschine (mit Atmosphärendruck) erfolgen. Falls der Zuluftvolumenstrom durch die Pressluft beeinflusst werden sollte, würde dies durch das im Zuluftrohr installierte Flügelradanemometer detektiert werden.

Aus den experimentell ermittelten Daten der konditionierten Pressluft

Temperatur..................... : T_p = 292,15 K
Relative Luftfeuchtigkeit . : φ_p = 6 %
Feuchtigkeitsgehalt......... : χ_p = 0,81349 g/kg

wird unter der Annahme von Standard-Druckbedingungen p = 101.300 Pa mit Gleichung 6.13 die Dichte der Pressluft berechnet:

$$\rho_p = \frac{101300\,Pa}{287{,}06\,Jkg^{-1}K^{-1} \cdot 292{,}15\,K} \cdot \left(1 - 0{,}3779 \frac{131{,}867\,Pa}{101300\,Pa}\right)$$

ρ_p = 1,2074 kg/m³

Analog Gleichung (6.22) gilt folglich für den Wassereintrag durch die Pressluft $m_{p,i}$ im Zeitintervall Δt= 5 s :

$$m_{p,i} = \frac{\dot{V}_{add} \cdot \rho_p}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_p}\right)} \quad (6.27)$$

Durch Einsetzen der oben berechneten konstanten Werte wird damit folgender Ausdruck erhalten:

$$m_{p,i} = 1{,}3630686 \cdot 10^{-6} \cdot \dot{V}_{add}$$

Durch den linearen Zusammenhang zwischen Pressluftvolumenstrom und Sprühluftdruck gemäß Gleichung 5.55 kann hiermit eine Bestimmungsgleichung für den Eintrag an Wasser durch die Pressluft gebildet werden:

$m_{p,i} = 2{,}07183 \cdot 10^{-6} \cdot p_s$ [kg]

Die Umrechnung in Gramm führt damit zu:

$$m_{p,i} = 2{,}07183 \cdot 10^{-3} \cdot p_s \qquad (6.28)$$

$m_{p,i}$ Wassereintrag durch die Pressluft in 5 Sekunden [g]

Beispiel:
Aus 3 bar Sprühluftdruck resultiert ein Wassereintrag von 0,006 g in 5 sec

6.1.4.4 Austrag Wasser duch die Abluft

Die Berechnung der Masse Wasser, die durch die Abluft aus der Maschine gefördert wird, entspricht im Ansatz den Analoga von Frisch- und Pressluft:

$$m_{A,i} = \frac{\dot{V}_{out} \cdot \rho_{out}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{out}}\right)} \qquad (6.29)$$

Der Abluftvolumenstrom $\dot{V}_{out}$ unterscheidet sich vom Zuluftvolumenstrom: Zu der Frischluft kommt der Pressluftvolumenstrom sowie das Gasvolumen, welches aus dem Verdunsten des eingesprühten Wassers resultiert. Da aufgrund der turbulenten Strömungsverhältnisse in der Anlage eine vollständige Durchmischung der drei Gasphasen angenommen werden kann, ist davon auszugehen, dass der Abluftfeuchtigkeitssensor das Feuchtigkeitssignal der homogenen Gasmischung misst. Der Abluftvolumenstrom ist unter folgenden Bedingungen größer als der Zuluftvolumenstrom:

- Es wird Pressluft eingesprüht
- Eingesprühtes bzw. an Partikeln adsorbiertes Wasser verdampft
- Das Fluid dehnt sich infolge Erwärmung aus

In der vorliegenden Instrumentierung des GPCG ist kein Sensor zur Bestimmung des Abluftvolumenstroms vorhanden.

Ausgangspunkt der anschließenden Berechnungen ist folgender Denkansatz:

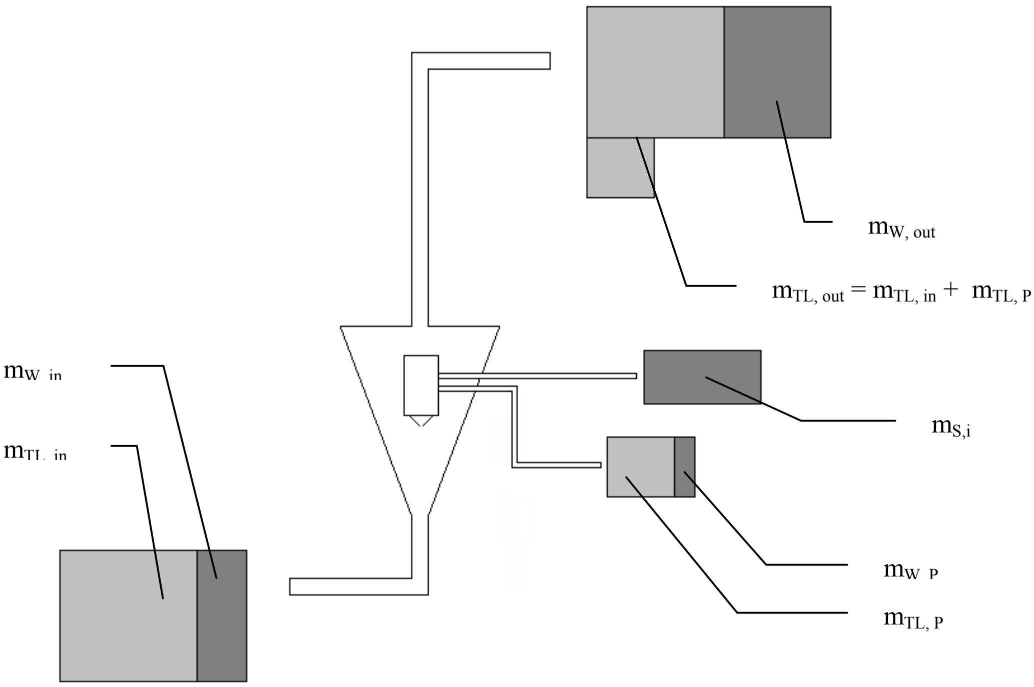


Abbildung 6-5 *Schema der Massenbilanzierung*

m_w = Masse Wasser [g]

m_{TL} = Masse trockene Luft [kg]

Die feuchte ungesättigte Luft wird gedanklich in zwei Teilvolumina aufgespalten: Ein Teil enthalte die reine trockene Luft, der andere den reinen Wasserdampf (also ohne Luft). Die Masse trockener Luft, die die Maschine verlässt $m_{TL,\ out}$ setzt sich additiv aus der Masse trockener Luft der Frischluft $m_{TL,\ in}$ und der der Pressluft $m_{TL,\ P}$ zusammen. Für die Wassermasse gilt diese Rechnung nicht, da ein Teil des Wassers möglicherweise am Produkt haften bleibt. Durch die druckkorrigierte Messung des Feuchtigkeitsgehalts der Abluft χ_{out} in Verbindung mit der Kenntnis der Masse trockener Luft, die die Maschine verlässt, kann unmittelbar eine Aussage über die dem Ansatz entzogene Masse Wasser getroffen werden.

Da in der Verfahrenstechnik seltener mit inkrementellen Betrachtungen gearbeitet wird, sondern der Ansatz über Massenströme üblich ist, sei auch dieses Schema angegeben:

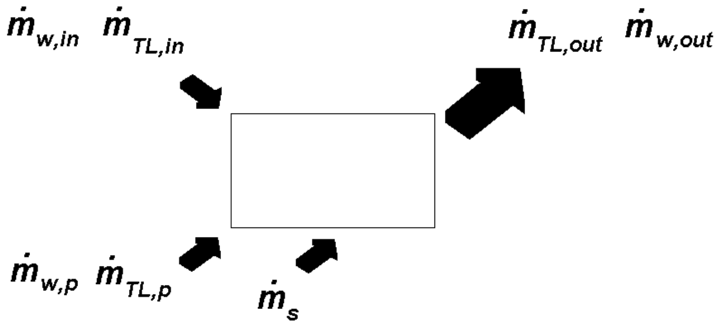


Abbildung 6-6 Schema der Massenströme am GPCG

Es gilt dabei für die Massenströme trockener Luft:

$$\dot{m}_{TL,in} + \dot{m}_{TL,p} = \dot{m}_{TL,out}$$

Da die Masse Wasser im GPCG variabel ist, sind die entsprechenden Massenströme nicht zwangsläufig gleich:

$$\dot{m}_{w,in} + \dot{m}_{s} \neq \dot{m}_{w,out}$$

Für die folgenden Berechnungen ist die Kenntnis der Masse trockener Luft $m_{TL,in}$, die im Zeitintervall Δt = 5 s durch den Wirbelschichtgranulierer angesaugt wird, Voraussetzung. Es gilt analog (6.16):

$$m_{ges,in} = m_{w,in} + m_{TL,in}$$

Auflösung nach $m_{TL,in}$ ergibt:

$$m_{TL,in} = m_{ges,in} - m_{w,in} \tag{6.30}$$

Aus der Definition der Dichte gemäß Gleichung 6.13 folgt für die Gesamtmasse angesaugter feuchter Luft:

$$m_{ges,in} = \rho_{in} \cdot V_{in,\Delta t}$$

Die Umrechnung in das Zeitinkrement 5 sec führt analog zu Gleichung 6.21 zu:

$$m_{ges,in} = \frac{\rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{720} \tag{6.31}$$

Um den Summanden $m_{w,in}$ in (6.30) durch einen Term zu ersetzen, in den nur messbare Größen eingehen, wird wiederum von der Definition des Feuchtigkeitsgehalts (2.17) ausgehend abgeleitet:

$$m_{w,in} = \chi_{in} \cdot m_{TL,in} \tag{6.32}$$

Aus (6.30) folgt mit (6.31) und (6.32) durch Auflösen nach $m_{TL,in}$:

$$m_{TL,in} = \frac{\dot{V}_{in}\,\rho_{in}}{720} - \chi_{in} \cdot m_{TL,in}$$

$$m_{TL,in} \cdot (1+\chi_{in}) = \frac{\dot{V}_{in}\,\rho_{in}}{720}$$

$$m_{TL,in} = \frac{\dot{V}_{in} \cdot \rho_{in}}{720 \cdot (1+\chi_{in})} \qquad (6.33)$$

Für die Masse trockener Luft, die mit der Pressluft im Zeitfenster $\Delta t = 5$ s eingetragen wird - $m_{TL,P}$ - gilt analog:

$$m_{TL,P} = \frac{\dot{V}_{add} \cdot \rho_P}{720 \cdot (1+\chi_P)}$$

Da die Pressluft konditioniert ist, sind die Dichte und Feuchtigkeitswerte konstant. Beim Einsetzen dieser Messwerte ist auf die Umrechnung des Feuchtigkeitsgehalts zu einer dimensionslosen Größe zu achten: der Zahlenwert muss aufgrund der Einheit g/kg durch 1000 dividiert werden!

$$m_{TL,P} = \frac{\dot{V}_{add} \cdot 1{,}2074 \cdot kg \cdot m^{-3}}{720 \cdot h^{-1} \cdot \left(1+\frac{0{,}81349}{1000}\right)}$$

$$m_{TL,P} = 1{,}675581 \cdot 10^{-3} \cdot \dot{V}_{add} \qquad [kg]$$

Um die direkte Abhängigkeit vom Sprühluftdruck zu erhalten, wird in diese Gleichung noch (5.55) eingesetzt:

$$m_{TL,P} = 2{,}54684123 \cdot 10^{-3} \cdot p_s \qquad [kg] \qquad (6.34)$$

Die Masse an trockener Luft, die im Zeitfenster $\Delta t = 5$ s den Wirbelschichtgranulierer verlässt, entspricht gerade der Summe von (6.33) und (6.34):

$$\mathrm{m_{TL,out}} = \mathrm{m_{TL,in}} + \mathrm{m_{TL,P}} \qquad (6.35)$$

Die Masse an Wasser, die im Zeitfenster $\Delta t = 5$ s aus dem Wirbelschichtgranulierer ausgetragen wird, kann nun unmittelbar aus der Definitionsgleichung des Feuchtigkeitsgehalts berechnet werden. In Analogie zu (2.17) gilt:

$$\chi_{out} = \frac{m_{w,out}}{m_{TL,out}}$$

Mit dem zuvor berechneten Wert von $m_{TL,out}$ und dem gemessenen, druckkorrigierten Wert χ_{out} gilt somit:

$$m_{A,i} = \chi_{out} \cdot m_{TL,out} \tag{6.36}$$

Ergänzend sei noch kurz dargestellt, wie sich der Abluftvolumenstrom berechnen lässt. Aus der Definition der Dichte (6.18) resultiert:

$$V_{out} = \frac{m_{ges,out}}{\rho_{out}}$$

Die Masse an feuchter Luft, die die Maschine im Zeitintervall $\Delta t = 5$ s verlässt, $m_{ges,out}$, entspricht gerade der Summe der Massen von Wasser und trockener Luft. Es gilt folglich:

$$V_{out} = \frac{m_{A,i} + m_{TL,out}}{\rho_{out}} \tag{6.37}$$

Der Abluftvolumenstrom ergibt sich durch Division von Gleichung 6.37 durch das Zeitinkrement $\Delta t = 5$ s:

$$\dot{V}_{out} = \frac{V_{out}}{5\,\text{sec}} = \frac{V_{out}}{\frac{5}{3600}h}$$

und führt damit zu:

$$\dot{V}_{out} = 720\,h^{-1} \cdot \frac{m_{A,i} + m_{TL,out}}{\rho_{out}} \tag{6.38}$$

Diese Gleichung bietet die Möglichkeit, die Zunahme des Abluftvolumenstroms gegenüber dem Zuluftvolumenstrom zu berechnen. Zum anderen sind hiermit alle Parameter bestimmt, um auch mit Gleichung 6.29 die Masse Wasser zu berechnen, die durch die Abluft im Zeitfenster $\Delta t = 5$ Sekunden aus dem Wirbelschichtgranulierer gefördert wird.

<u>Beispiel:</u>
(Zahlenwerte aus Batchreport von Experiment 0193, 1:10:02 h nach Prozessbeginn)

$\dot{V}_{in} = 74\ m^3/h$
$\varphi_{im} = 36{,}2\ \%$
$\upsilon_{in} = 28{,}4\ °C$
$p_{in} = 98.150\ Pa$
$P_s = 3{,}0\ bar$
$\varphi_{out} = 65{,}5\ \%$
$\upsilon_{out} = 33{,}1\ °C$
$p_{out} = 96.580\ Pa$

Die Berechnung des effektiven Volumenstroms erfolgt mit einem Korrekturwert von k´= 0,890 und ergibt 65,892 m³/h

Die Dichte der Frischluft beträgt 1,1277 kg/m³

Der Feuchtegehalt der Frischluft beträgt 9,010 g/kg

Die Masse trockener Luft, die mit der Frischluft in 5 Sekunden eingetragen wird, ergibt sich zu:

$$m_{TL,in} = \frac{65{,}892\,m^3/h \cdot 1{,}1277\,kg/m^3}{720h^{-1} \cdot (1 + \frac{9{,}010\,g}{1000\,g})} = 0{,}10228\,kg = 102{,}28\,g$$

Aus der Pressluft addiert sich dazu:

$$m_{TL,P} = 2{,}5468 \cdot 10^{-3} \cdot 3 = 0{,}00764\,kg = 7{,}64\,g$$

Der Gesamteintrag an trockener Luft in 5 Sekunden beträgt $m_{TL,out}$ = 109,92 g

Der Feuchtigkeitsgehalt der Abluft beträgt 22,116 g/kg

Aus diesen beiden Werten resultiert gemäß (6.36) ein Wasseraustrag von

$$m_{A,i} = \frac{22{,}116\,g}{kg} \cdot 0{,}10992\,kg = 2{,}431\,g$$

Um einen Eindruck über die Expansion des Fluids durch das verdunstete Wasser zu geben, wird an dieser Stelle zusätzlich auch der Abluftvolumenstrom berechnet. Er beträgt bei einer Abluftdichte von ρ_{out} = 1,084 kg/m³ gemäß (6.38):

$$\dot{V}_{out} = 720\,h^{-1} \cdot \frac{2{,}431\,g + 109{,}92\,g}{1{,}084\,kg/m^3}$$

$$\dot{V}_{out} = 74{,}62\ m^3/h$$

und liegt damit um 13,3 % über dem Zuluftvolumenstrom.
Zum Vergleich: Gleichung (6.29) liefert mit diesen Daten:

$$m_{A,i} = \frac{74{,}62\,m^3/h \cdot 1{,}084\,kg/m^3}{720h^{-1} \cdot \left(1 + \frac{1}{22{,}116\frac{g}{kg}}\right)} = 2{,}4308\,g$$

Abschließend soll aufgezeigt werden, wie unter diesen Bedingungen ein konstanter Wassergehalt in der Anlage zu realisieren wäre. Es gilt für diesen Fall:

$$m_{F,i} + m_{p,i} + m_{s,i} - m_{A,i} = 0$$

$$m_{s,i} = m_{A,i} - m_{p,i} - m_{F,i} \qquad (6.39)$$

Für den Eintrag an Wasser mit der Pressluft gilt gemäß (6.28):

$$m_{p,i} = 2{,}0718 \cdot 10^{-3} \cdot 3$$
$$m_{p,i} = 0{,}006\,g$$

Der Eintrag an Wasser durch die Frischluft wird gemäß (6.22) berechnet:

$$m_{F,i} = \frac{1{,}1277\,kg/m^3 \cdot 65{,}892\,m^3/h}{720h^{-1} \cdot \left(1 + \frac{1000\,g}{9{,}010\,g}\right)}$$
$$m_{F,i} = 0{,}922\,g$$

Für den notwendigen Eintrag an Wasser durch die Sprühflüssigkeit gilt daher mit (6.39):

$$m_{s,i} = 2{,}431\,g - 0{,}006\,g - 0{,}922\,g$$

$$m_{s,i} = 1{,}503\,g$$

Es müssen folglich 1,503 g Wasser mit der Sprühflüssigkeit in 5 s in die Anlage gepumpt werden, um keine Veränderung der Wassermasse zu erreichen. Bei einer 5 % (m/V) PVP-Lösung als Bindemittel beträgt der Massenbruch gemäß (6.25):

$$W_{WB} = 1 - \frac{50\,g}{1050\,g} = 95{,}23\,\%$$

Gemäß (6.24) ergibt sich damit eine Sprühflüssigkeitsmasse von

$$m_{Sprühflüssigkeit} = \frac{m_{Wasser}}{W_{WB}} = \frac{1{,}503\,g}{0{,}9524}$$

$m_{Sprühflüssigkeit}$ = 1,578 g

Aus der Umrechnung auf die Zeiteinheit Minute resultiert eine Sprührate von 18,937 g/min, was einer Pumpeneinstellung von ca. 33 Skalenteilen entspricht.

6.1.5 Fehlerrechnung

Zur Bestimmung der Größe *„Masse des Wassers im Ansatz zum Zeitpunkt t"* müssen wie vorab dargestellt mehrere Parameter bestimmt und miteinander verrechnet werden. Alle diese Werte sind mit Fehlern behaftet, die sich auf die zu ermittelnde Größe $m_{Wasser\ im\ Ansatz}(t)$ auswirken. Da hier dynamische Prozesse betrachtet werden, sind nur Einzelmessungen möglich*. Es gilt daher, den Maximalfehler einer Einzelmessung zum Beobachtungszeitpunkt t zu ermitteln[192, 193]. Für eine Funktion z = f(a, b, c,...) gründet der maximale Fehler auf dem totalen Differential:

$$df = \frac{\partial f}{\partial a}da + \frac{\partial f}{\partial b}db + \frac{\partial f}{\partial c}dc + ... \quad (6.40)$$

df *Maximalfehler der Einzelmessung*

$\frac{\partial f}{\partial a}$ *Partielle Ableitung der Funktion f nach a*

da *Maximalfehler des Parameters a*

Da sich die einzelnen Terme in dieser Darstellung je nach Verteilung von positiven und negativen Vorzeichen kompensieren und so ein falsches Resultat vortäuschen könnten, werden anstatt der Maximalwerte deren Beträge sowie die Beträge der partiellen Ableitungen eingesetzt. Somit gilt für den Maximalfehler einer Einzelmessung:

$$df = \left|\frac{\partial f}{\partial a}\right| \cdot |da| + \left|\frac{\partial f}{\partial b}\right| \cdot |db| + \left|\frac{\partial f}{\partial c}\right| \cdot |dc| + ... \quad (6.41)$$

Wird der mit dieser Gleichung berechnete maximale Fehler df auf den Mittelwert der Zielgröße z bezogen, so resultiert daraus der relative Maximalfehler:

$$relativer\ Maximalfehler = \frac{df}{\bar{z}} \quad (6.42)$$

Die Daten der Messungenauigkeit der Sensoren wird von den Herstellern entweder direkt als Maximalfehler oder als prozentuale Abweichung vom Endwert, also dem größtmöglichen Messwert, angegeben. Dadurch lässt sich

* *Eine Mittelwertbildung eines Parameters zu einem Zeitpunkt t wäre nur dann möglich, wenn mehrere Sensoren für die selbe Messgröße am selben Messort installiert wären*

der Maximalfehler unmittelbar ermitteln. Eine Zusammenstellung dieser Werte findet sich in folgender Tabelle:

Tabelle 6-1 *Maximalfehler der Sensorik*

Messgröße	Messbereich	Maximalfehler
Frischlufttemperatur	-50..+600 °C	± 0,4 K
Temperatur Frischluftfeuchtefühler	0..100 °C	± 0,35 K ± 0,5 % r.F.
Frischluftfeuchtigkeit	0..100 % rel. Feuchte	
Volumenstrom	0,4..40 m/s	± 0,15 m/s
Absolutdruck Umgebungsluft	90.000 .. 110.000 Pa	± 200 Pa
Differenzdruck Frischluftfeuchtemessstelle	0 .. 2000 Pa	± 40 Pa
Zulufttemperatur	-50..+600 °C	± 0,4 K
Sprühflüssigkeitsmasse	0..4000 g	± 0,01 g
Temperatur im Abluftfeuchtesensor	0..100 °C	± 0,35 K ± 0,5 % r.F.
Abluftfeuchtigkeit	0..100 % rel. Feuchte	
Ablufttemperatur	-50..+600 °C	± 0,4 K
Differenzdruck Abluftfeuchtemessstelle	0 .. 2000 Pa	± 40 Pa

Exemplarisch wird im Folgenden für zwei wichtige Parameter der Massenbilanzierung die Berechnung des Maximalfehlers einer Einzelmessung ausführlich aufgezeigt. In einem dritten Beispiel wird dann der Einfluß dieser Maximalfehler auf die Massenbilanzierung dargestellt.

Beispiel 1:
Zum Zeitpunkt t habe die Messwerterfassung folgende Werte aufgezeichnet:

$\varphi = 50\ \%$ $\quad T = 323\ K$ $\quad p = 98.000\ Pa$

Aus Gleichung 6.13 für die Berechnung der Dichte feuchter Luft

$$\rho = \frac{p}{R_L T} \cdot \left(1 - 0{,}3779 \frac{\varphi \cdot p_D}{p}\right) \tag{6.13}$$

folgt für die partiellen Ableitungen:

$$\frac{\partial \rho}{\partial p} = \frac{1}{R_L T}$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial T} = -\frac{p}{R_L} \cdot \left(1 - 0{,}3779 \frac{\varphi \cdot p_D}{p}\right) \cdot \frac{1}{T^2}$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial p_D} = -\frac{0{,}3779 \cdot \varphi}{R_L \cdot T}$$

$$\frac{\partial\rho}{\partial\varphi} = \frac{0{,}3779 \cdot p_D}{R_L \cdot T}$$

Aus Tabelle 6-1 werden folgende Werte entnommen:

Maximalfehler für die Absolutdruckbestimmung = 240 Pa
(als Summe von Absolut- und Differenzdruckmessung)

Maximalfehler für die Temperatur = 0,35 K

Maximalfehler für die relative Luftfeuchte = 0,5 %

Maximalfehler für den Sättigungsdampfdruck bei Berechnung mittels ASHRAE-Formel 1 % des Wertes. Hier:
p_D(323 K) = 12349 Pa folglich ein Maximalfehler von 123 Pa

Mit der Gaskonstante für Luft R_L = 287 J · kg^{-1} · K^{-1} folgt:

$$df = \frac{1}{287\frac{J}{kg \cdot K} \cdot 323\,K} \cdot 240\,Pa$$

$$+ \frac{98000\,Pa}{287\frac{J}{kg \cdot K}} \cdot \left(1 - 0{,}3779 \cdot \frac{0{,}5 \cdot 12349\,Pa}{98000\,Pa}\right) \cdot \frac{1}{(323\,K)^2} \cdot 0{,}35\,K$$

$$+ \frac{0{,}3779 \cdot 0{,}5}{287\frac{J}{kg \cdot K} \cdot 323\,K} \cdot 123\,Pa + \frac{0{,}3779 \cdot 12349\,Pa}{287\frac{J}{kg \cdot K} \cdot 323\,K} \cdot 0{,}005$$

$$df = 4{,}207 \cdot 10^{-3} \frac{Pa \cdot kg}{J}$$

Mit Pa = N/m² und J = N· m wird daraus die richtige Einheit für den Maximal-fehler:

$$df = 4{,}207 \cdot 10^{-3} \frac{kg}{m^3}$$

Mit Gleichung 6.13 wird die Dichte der feuchten Luft berechnet. Damit folgt für den relativen Maximalfehler:

$$\frac{df}{\rho} = \frac{4{,}207 \cdot 10^{-3} \frac{kg}{m^3}}{1{,}03129 \frac{kg}{m^3}} = 0{,}004\,\%$$

Beispiel 2:
Aus den Messwerten von Beispiel 1 soll der Maximalfehler der Bestimmung des Feuchtigkeitsgehalts gemäß Gleichung 2.27

$$\chi = 622 \cdot \frac{\varphi \cdot p_D}{p - \varphi \cdot p_D} \qquad (2.27)$$

ermittelt werden. Es gilt für die partiellen Ableitungen unter Anwendung der Quotientenregel:

$$\frac{\partial \chi}{\partial \varphi} = \frac{622 \cdot p_D \cdot (p - p_D) - (-p_D) \cdot 622 \cdot \varphi \cdot p_D}{(p - \varphi \cdot p_D)^2} = \frac{622 \cdot p \cdot p_D}{(p - \varphi \cdot p_D)^2}$$

$$\frac{\partial \chi}{\partial p} = \frac{0 \cdot (p - \varphi \cdot p_D) - 1 \cdot 622 \cdot \varphi \cdot p_D}{(p - \varphi \cdot p_D)^2} = -\frac{622 \cdot \varphi \cdot p_D}{(p - \varphi \cdot p_D)^2}$$

$$\frac{\partial \chi}{\partial p_D} = \frac{622 \cdot \varphi \cdot (p - \varphi \cdot p_D) - (-\varphi) \cdot 622 \cdot \varphi \cdot p_D}{(p - \varphi \cdot p_D)^2} = \frac{622 \cdot \varphi \cdot p}{(p - \varphi \cdot p_D)^2}$$

Für den Maximalfehler einer Einzelmessung folgt damit:

$$df = \frac{622 \cdot 12349\,Pa \cdot 98000\,Pa}{(98000\,Pa - 0{,}5 \cdot 12349\,Pa)^2} \cdot 0{,}005 + \frac{622 \cdot 0{,}5 \cdot 12349\,Pa}{(98000\,Pa - 0{,}5 \cdot 12349\,Pa)^2} \cdot 240\,Pa$$

$$+ \frac{622 \cdot 0{,}5 \cdot 98000\,Pa}{(98000\,Pa - 0{,}5 \cdot 12349\,Pa)^2} \cdot 123\,Pa$$

$$df = 0{,}4463 + 0{,}1093 + 0{,}4445$$
$$df = 1{,}0002$$

Das Ergebnis dieser Rechnung ist zunächst scheinbar ohne Einheit. Da diese Größe als Massengehalt definiert ist, kürzen sich die Einheiten hier folgerichtig heraus. Da der Feuchtegehalt jedoch die Einheit g/kg hat, ist dies hier noch zu ergänzen. Mit dem Zahlenwert für den Feuchtegehalt folgt für den relativen Maximalfehler:

$$\frac{df}{\chi} = \frac{1{,}0002\,\frac{g}{kg}}{41{,}8274\,\frac{g}{kg}} = 2{,}4\,\%$$

Beispiel 3:
Ausgehend von den Messwerten von Beispiel 1 und 2 wird die Masse an Wasser mit ihrem Maximalfehler berechnet, die bei einem Volumenstrom von 75 m^3/h in einem 5 s-Intervall in den GPCG gefördert wird. Es gilt gemäß Gleichung 6.22:

$$m_{F,i} = \frac{\rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)} = \frac{1{,}03129 \frac{kg}{m^3} \cdot 75 \frac{m^3}{h}}{720 h^{-1} \cdot \left(1 + \frac{1}{41{,}8274 \frac{g}{kg}}\right)} = 4{,}3130\, g$$

Da die Fehlerangabe des Flügelradanemometers auf einer Strömungsgeschwindigkeit basiert, muss zunächst die Umrechnung in den Maximalfehler der Volumenstrommessung durchgeführt werden. Durch Einsetzen der Werte PF = 0,849, d = 7 cm sowie dem Maximalfehlerwert von u = ± 0,15 m/s in Gleichung 5.7 folgt:

$$df_{\dot{V}} = 0{,}849 \cdot \pi \cdot \left(3{,}5 \cdot 10^{-2} m\right)^2 \cdot 0{,}15 \frac{m}{s}$$

$$= 4{,}9010 \cdot 10^{-4} \frac{m^3}{s}$$

$$df_{\dot{V}} = 1{,}76 \frac{m^3}{h}$$

Für die Berechnung des Maximalfehlers der Einzelmessung von $m_{F,i}$ werden wiederum zunächst die partiellen Ableitungen gebildet:

$$\frac{\partial m_{F,i}}{\partial \rho_{in}} = \frac{\dot{V}_{in}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)}$$

$$\frac{\partial m_{F,i}}{\partial \dot{V}_{in}} = \frac{\rho_{in}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)}$$

Mit Anwendung von Quotienten- und Kettenregel folgt:

$$\frac{\partial m_{F,i}}{\partial \chi_{in}} = \frac{0 - 720 \cdot \left(-\frac{1}{\chi_{in}^{\;2}}\right) \cdot \rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{\left[720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)\right]^2} = \frac{\rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{720 \cdot \left(1 + \frac{1}{\chi_{in}}\right)^2 \cdot \chi_{in}^{\;2}}$$

Der Maximalfehler einer Einzelmessung resultiert zu:

$$df = \frac{75\frac{m^3}{h}}{720h^{-1}\cdot\left(1+\frac{1}{41{,}8274g/kg}\right)}\cdot 0{,}004207\frac{kg}{m^3}+\frac{1{,}03129\frac{kg}{m^3}}{720h^{-1}\cdot\left(1+\frac{1}{41{,}8274g/kg}\right)}\cdot 1{,}76\frac{m^3}{h}$$

$$+\frac{1{,}03129\frac{kg}{m^3}\cdot 75\frac{m^3}{h}}{720h^{-1}\cdot\left(1+\frac{1}{41{,}8274g/kg}\right)^2\cdot\left(41{,}8274g/kg\right)^2}\cdot 1{,}0002\frac{g}{kg}$$

$$df = 1{,}7594\cdot 10^{-5}kg + 1{,}0121\cdot 10^{-4}kg + 0{,}09899\,g$$

$$df = 0{,}2178\,g$$

Der relative Maximalfehler dieser Einzelmessung wird zu:

$$\frac{df}{m_{F,i}} = \frac{0{,}2178\,g}{4{,}3130\,g} = 5{,}05\%$$

6.2 LEERTESTUNG DES GPCG

Die LabView®-Messwerterfassung liefert zu Ende eines jeden WSG-Prozesses eine Microsoft® EXCEL-Datei mit den im Abstand von 5 Sekunden aufgezeichneten Messwerten sowie deren Darstellung in Diagrammform. Es ist erforderlich, das Verhalten der Anlage im Leerbetrieb zu kennen, bevor die Resultate eines komplexen Granulationsversuches interpretiert werden können.

6.2.1 Volumenstrom

Der Volumenstrom erreicht 4 Minuten nach dem Prozessstart seinen Sollwert von 75 m^3/h.

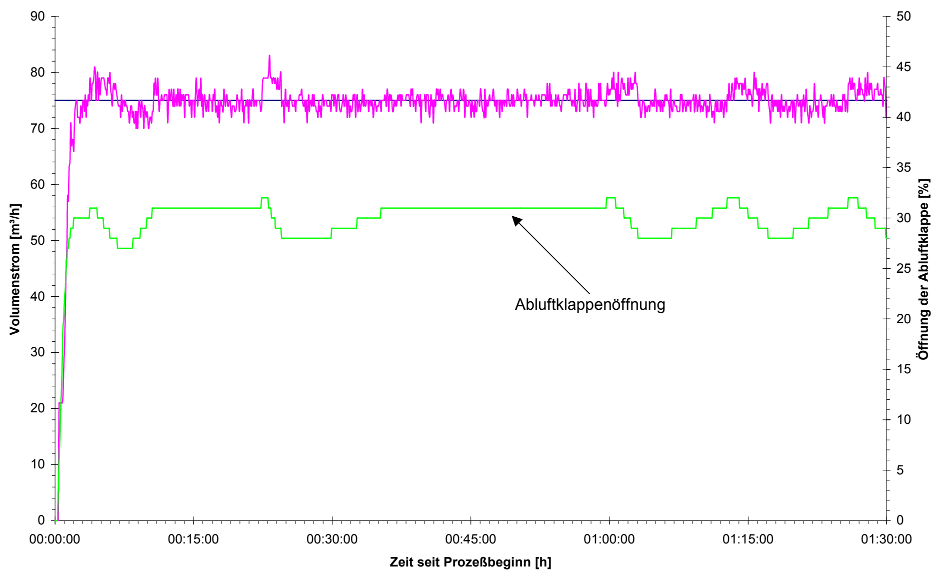


Abbildung 6-7 *Volumenstrom bei Leertestung*

Da der Mittelwert der Volumenstrommessung 74,99 m³/h mit einer Standardabweichung von 1,80 m³/h beträgt, wird die Volumenstromregelung als sehr gut bewertet.

6.2.2 Temperaturen

Die Zuluft erreicht bereits nach einer vierminütigen Anlaufphase ihren Sollwert von 50 °C.

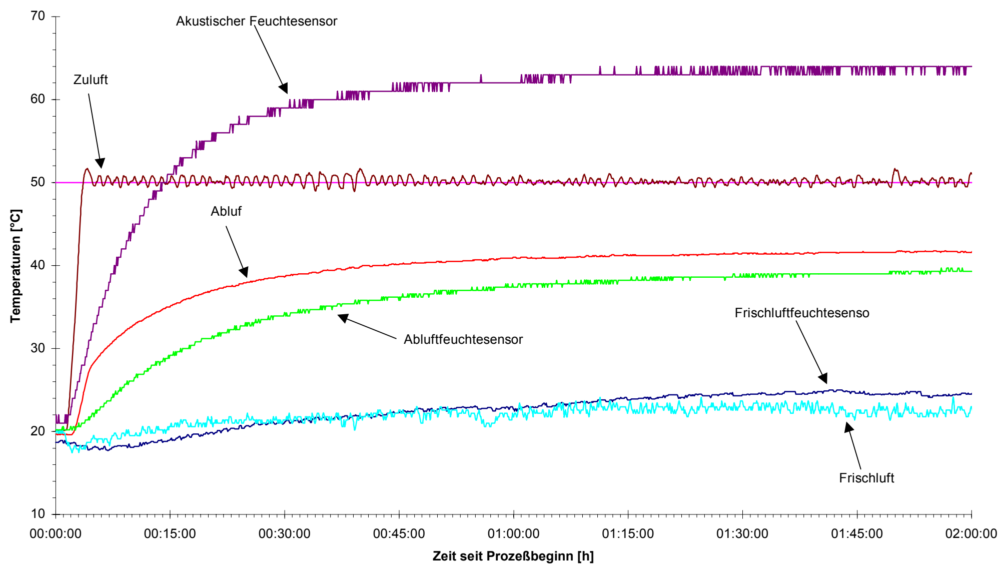


Abbildung 6-8 *Temperaturverlauf bei der Leertestung*

Die Temperatur innerhalb des Abluftfeuchtesensors liegt erwartungsgemäß unterhalb jener der Abluft. Die Temperaturen von Frischluft und Frischluftfeuchtesensor unterscheiden sich nur geringfügig um maximal 3 °C. Die Temperatur im akustischen Feuchtesensor entspricht derjenigen am Abluftgräting des GPCG. Dieser Wert liegt stets oberhalb der Ablufttempera-

tur. Nach 15 Minuten übersteigt die Temperatur am Abluftgräting sogar diejenige der aufgeheizten Zuluft. Am Ende dieses Experimentes ist eine Temperaturdifferenz von 15 °C zwischen Abluftgräting und Zuluft sowie von 24 °C zwischen Abluftgräting und Abluftfeuchtemeßstelle zu registrieren. Um diesen Effekt genauer zu untersuchen, wird die Anlage in einem weiteren Experiment zunächst ohne Heizung gefahren, wobei der externe Temperaturfühler in die Messzelle des akustischen Feuchtesensors eingebaut wird. Auch in diesem Fall steigt die Temperatur an dieser Stelle nach 15 Minuten bereits auf 55 °C an und liegt damit um 35 °C über dem im Abluftrohr gemessenen Wert. Die Ursache hierfür wird zum einen in der Kompression der Luft hinter dem Saugventilator, zum anderen durch Aufheizeffekte im Inneren des GPCG gesehen.

6.2.3 Basislinienstabilität der Feuchtesensoren

Wird durch den leeren GPCG Frischluft gefördert, so ist der Feuchtegehalt der strömenden Luft an den beiden Feuchtemessstellen nach einer kurzen Äquilibrierphase, in welcher gegebenenfalls Restfeuchte aus der Anlage entfernt wird, identisch. Aufgrund der Temperatur- und Druckunterschiede zwischen den Einbaustellen der beiden Feuchtesensoren divergieren jedoch die gemessenen relativen Feuchten, wie folgende Abbildung verdeutlicht:

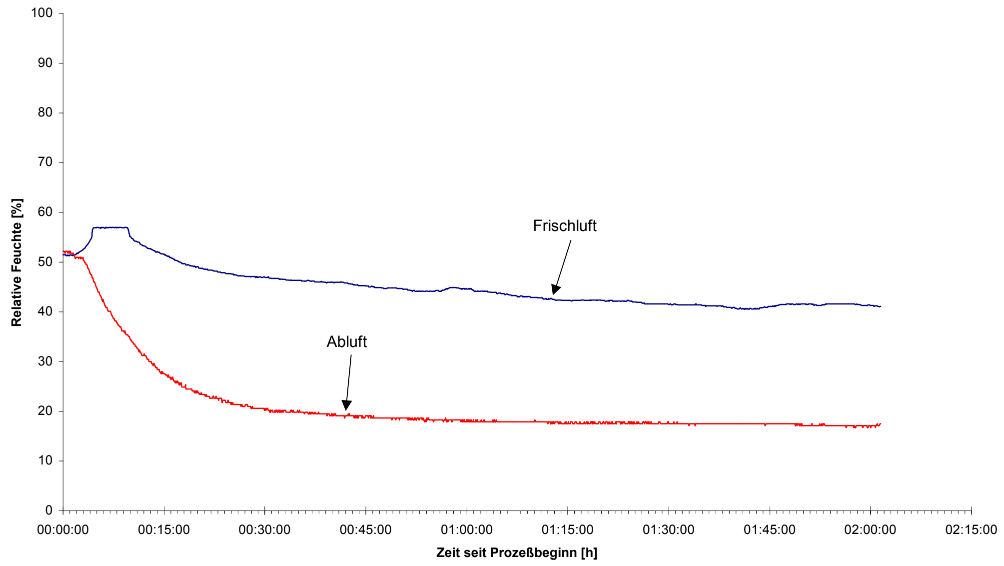


Abbildung 6-9 *Relative Feuchten bei Leertestung des GPCG*

Unter der Voraussetzung eines konstanten Frischluftfeuchtegehalts sinken die gemessenen relativen Feuchten φ_{in} und φ_{out} mit steigender Temperatur in der Anlage. Die Umrechnung in Feuchtigkeitsgehalte führt zu stabileren Basislinien:

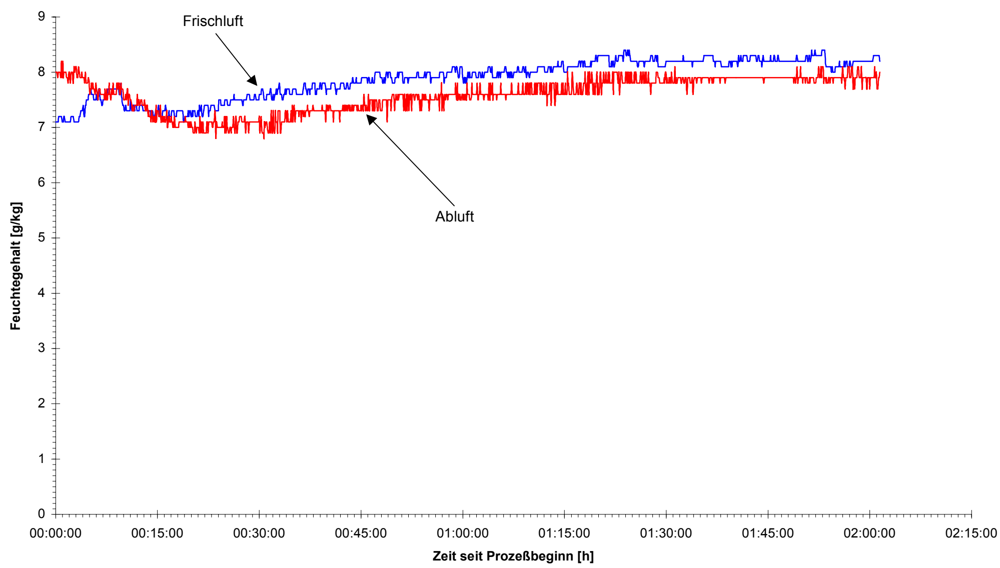


Abbildung 6-10 *Feuchtegehalte bei Leertestung des GPCG*

Vergleichsmessungen mit der Huger Wetterstation belegen die Richtigkeit der Messwerte der Frischluftfeuchte.

6.2.4 Korrektur der Sensordrifts

Der Leerbetrieb des GPCG sollte zu identischen Werten von Frisch- und Abluftfeuchtegehalt führen. Da die verwendeten Feuchtigkeitsfühler allerdings einen Fehler von jeweils maximal 0,5 % der relativen Feuchte und 0,5 °C der Temperatur aufweisen, beobachtet man in der Praxis zumeist eine Abweichung der beiden Parameter χ_{in} und χ_{out}, wie Abbildung 6-10 zeigt. Sobald die Messwerte von Frischluft- und Abluftfeuchtegehalt divergieren, kommt es in der Massenbilanzierung zwangsläufig zu einer Änderung der Wassermasse im Ansatz. Voraussetzung für eine Bilanzierungsrechnung ist daher die Übereinstimmung der Messwerte χ_{in} und χ_{out} im Leerbetrieb des GPCG. Da die Richtigkeit der Messwerte des Frischluftfeuchtefühlers experimentell bewiesen wurde, wird im Fall einer systematischen Abweichung der Feuchtegehaltswerte untereinander der Kurvenverlauf von χ_{out} durch eine Lineartransformation auf χ_{in} abgebildet:

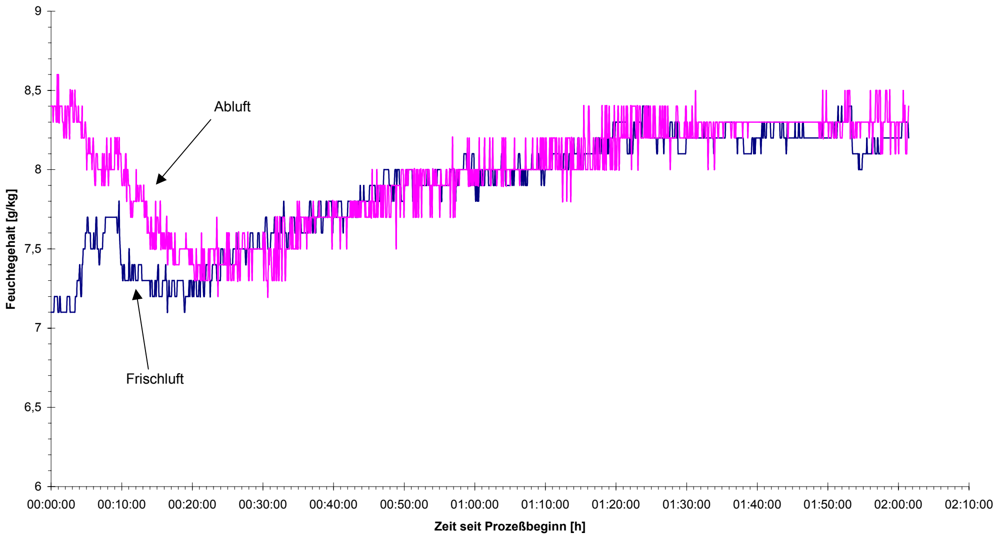


Abbildung 6-11 *Ergebnis der Lineartransformation*

Der unterschiedliche Verlauf der Messwerte zu Beginn der Aufzeichnung liegt in verschiedenen Äquilibrierprozessen der Sensoren begründet. Eine Massenbilanzierung ist folglich erst nach dieser Zeit möglich. Da jedem Granulationsprozess eine thermische Äquilibrierphase der nicht-befüllten Anlage vorangestellt ist, wird die dargestellte Korrektur der Feuchtemesswerte jeweils am Ende dieser Phase für jedes Experiment individuell realisiert.

6.2.5 Strömungswiderstände der Filter

Der Differenzdruck zwischen Ober- und Unterseite eines durchströmten Filters hängt von zwei Faktoren ab:

- Filterwiderstand: *je stärker die Filteroberfläche durch Partikeln belegt ist, desto größer wird der Differenzdruck*
- Strömungsgeschwindigkeit des Fluids: *je höher der Volumenstrom, desto größer der Differenzdruck*

Diese Aussagen gelten analog für die Druckdifferenz über den Anströmboden.

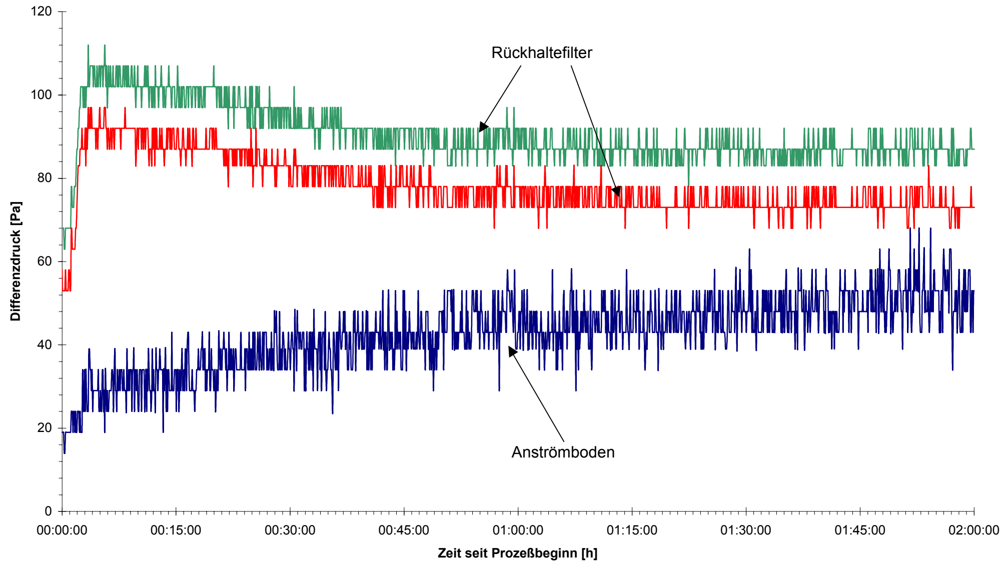


Abbildung 6-12 *Differenzdrucke über Anströmboden und Rückhaltefilter*

Das scheinbar starke Rauschen dieser Messwerte liegt darin begründet, dass diese Ergebnisse an der unteren Grenze des Arbeitsbereichs der Sensoren liegen: Bei Produktbeladung des GPCG erreichen die Differenzdrucke über den Anströmboden Werte über 1000 Pa; die Warngrenze für die Belastung der Rückhaltefilter liegt sogar bei 4000 Pa. Die Tatsache, dass die Differenzdrucke über den beiden Hälften des Rückhaltefilters geringfügig differieren, wird lokalen Unterschieden in der Filterbeschaffenheit zugeschrieben.

6.2.6 Absolutdrucke

Aufgrund der geographischen Höhe Würzburgs von 260 m über dem Meeresspiegel liegt der durchschnittliche Luftdruck deutlich unterhalb der Standardbedingungen von 101.325 Pa, wie folgendes Diagramm verdeutlicht[156]:

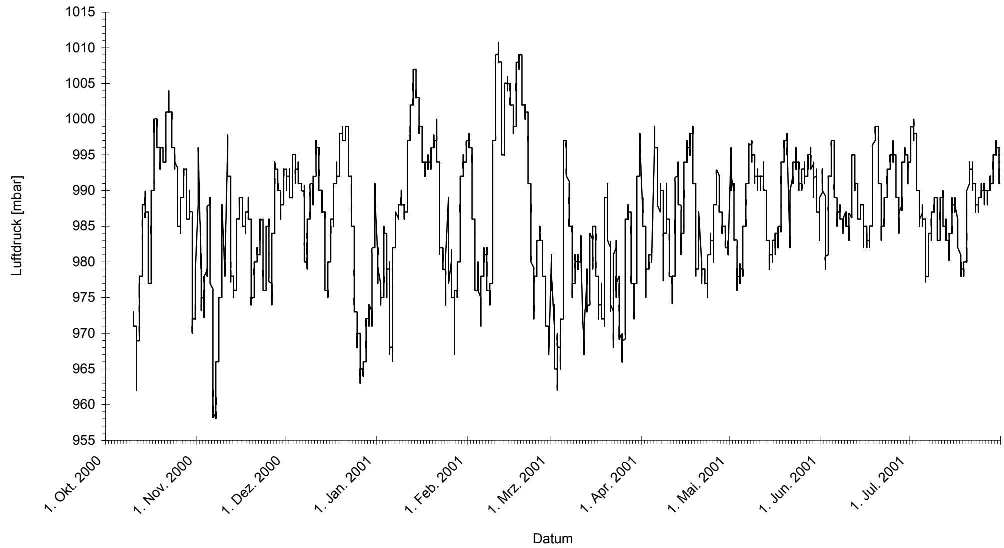


Abbildung 6-13 *Entwicklung des Luftdrucks in Würzburg (260 m über NN) Oktober 2000 bis Juli 2001*

Die Messwerte des Absolutdrucksensors im GPCG weichen von denen der am GPCG temporär installierten Huger Wetterstation WMR 918H um maximal 100 Pa ab:

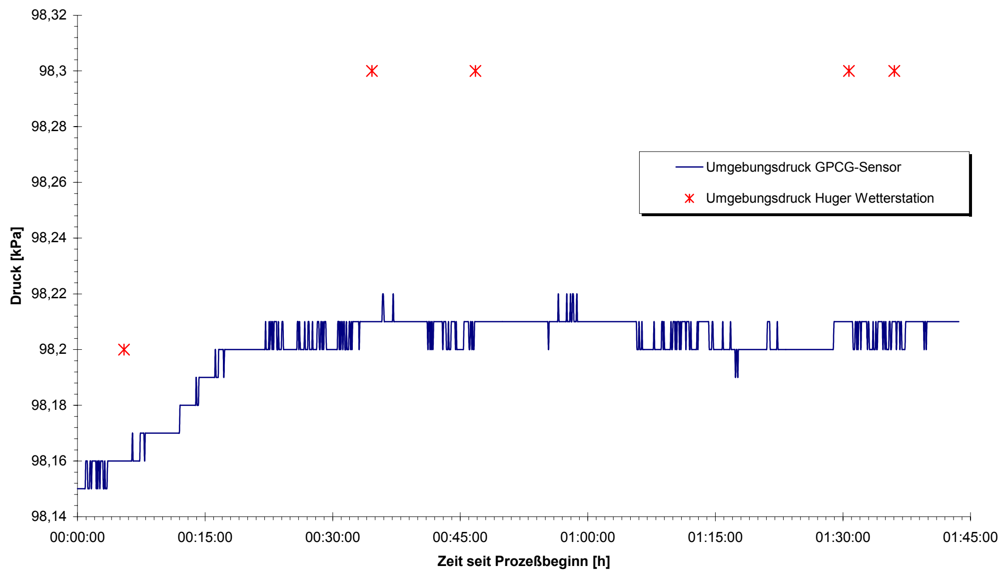


Abbildung 6-14 *Vergleichsmessung des Umgebungsluftdrucks mit Huger-Wetterstation*

Diese Differenz ist deutlich geringer als der Maximalfehler von 200 Pa des im GPCG eingebauten Sensors. Das obige Diagramm verdeutlicht zudem die Basislinienstabilität der Absolutdruckmessung. Der Anstieg innerhalb der ersten 20 Minuten ist auf Luftdruckschwankungen zurückzuführen. Der Einbauort des Frischluftfeuchtesensors liegt 80 cm hinter dem Ansaugstutzen der Frischluft; der statische Druck an dieser Stelle p_{in} ist nur geringfügig niedriger als der Umgebungsluftdruck p. Der statische Druck an der Feuchtemessstelle der Abluft p_{out} wird vom Strömungswiderstand des Anströmbodens, vom Beladungsgrad des Granulators, dem Widerstand der Rückhaltefilter und von der Saugleistung des Ventilators bestimmt. Die Druckdifferenz zwischen Umgebungsluftdruck p und statischem Druck an der Abluftfeuchtemessstelle p_{out} ist stets größer als die Summe der Druckdifferenzen über Anströmboden und Rückhaltefilter. Dies liegt in Strömungsverlusten begründet:

$$\Delta p_{out} \equiv p - p_{out}$$

$$\Delta p_{out} = \Delta p_{Anströmboden} + \Delta p_{Rückhaltefilter} + \Delta p_{Wirbelschicht} + \Delta p_{Strömungsverlust} \qquad (6.43)$$

p *Umgebungsluftdruck [Pa]*
p_{out} *Statischer Druck an der Feuchtemessstelle der Abluft [Pa]*

Die gemessenen Absolutdrucke belegen diese Aussagen:

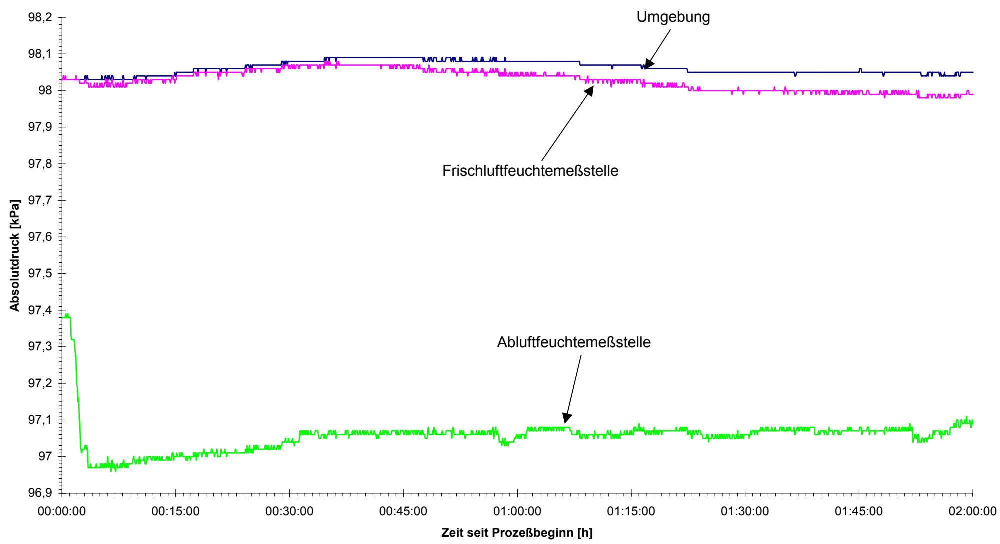


Abbildung 6-15 *Absolutdrucke bei Leertestung des GPCG mit einem Volumenstrom von 75 m³/h*

Der Absolutdruck an der Frischluftfeuchtemessstelle liegt erwartungsgemäß nur geringfügig unterhalb des Umgebungsdrucks. Die maximale Abweichung beträgt bei diesem Experiment 60 Pa. Unmittelbar mit dem Anstieg des Volumenstroms sinkt der Absolutdruck an der Abluftfeuchtemessstelle. Er erreicht während dieses Versuchs eine maximale Differenz von 1 kPa zum Umgebungsdruck.

6.3 EINSPRÜHEN VON WASSER IN DEN LEEREN GPCG

6.3.1 Überprüfung der Richtigkeit des akustischen Feuchtesensors

Bevor Vergleichsmessungen zum Ansprechverhalten der kapazitiven Feuchtesensoren durchgeführt werden, wird in einem Vorversuch die Richtigkeit des akustischen Feuchtesensors überprüft. Hierzu wird der GPCG mit einer Zulufttemperatur von 60 °C leer gefahren und nach einer dreißigminütigen Äquilibrierphase der Volumenstrom sukzessive reduziert.

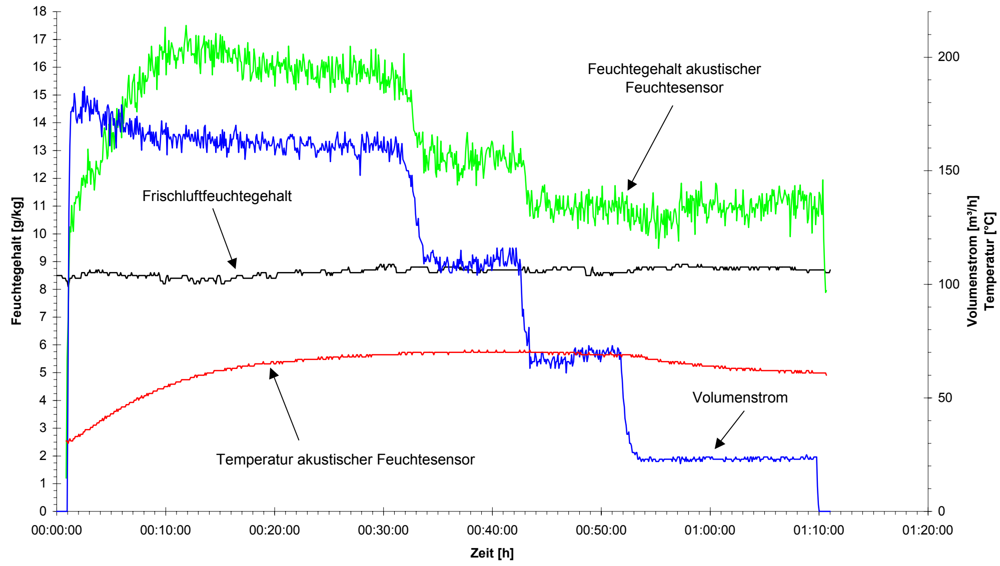


Abbildung 6-16 *Ergebnisse der Überprüfung der Richtigkeit des akustischen Feuchtesensors*

Während der thermischen Äquilibrierphase steigt die Temperatur der Abluft und damit auch die des akustischen Feuchtesensors. Dies führt widererwarten zu einem Anstieg der Messwerte dieses Sensors. Der Vergleich mit dem Frischluftfeuchtegehalt zeigt hingegen auf, dass der Feuchtegehalt des Fluids während dieses Versuchs konstant ist. Zusätzliche Vergleichsmessungen mit der am Ansauggräting des GPCG installierten HUGER Wetterstation belegen die Richtigkeit des kapazitiven Frischluftfeuchtesensors. Die Ursache des Drifts des akustischen Feuchtesensors wird in der während dieses Zeitfensters nicht gegebenen thermischen Äquilibrierung des Messfühlers gesehen[194]: Die Messung des akustischen Feuchtesensors ist nur dann richtig, wenn bei Mess- und Referenzoszillator die gleichen Temperaturen herrschen. Während der Aufheizphase steigt die Ablufttemperatur schnell stark an. Die Referenzluft wird nur durch den Sensorkörper temperiert. Da dieses Aluminiumteil jedoch selbst einige Zeit benötigt, um die Ablufttemperatur zu erreichen, weichen die Temperaturen von Mess- und Referenzluftstrom in diesem Zeitraum so deutlich voneinander ab, dass die Messung verfälscht wird. Dieser Fehler könnte durch eine aktive Aufheizung des akustischen Feuchtesensors auf eine Temperatur oberhalb der der Abluft behoben werden: Mess- und Referenzluft hätten damit sicher die gleiche Temperatur.

Im Zeitfenster 20 bis 30 Minuten wird eine stabile Basislinie erhalten, da Volumenstrom und Sensortemperatur konstant sind.

Der dritte Versuchsabschnitt belegt, dass die Abnahme des Volumenstroms im Intervall 80 bis 150 m^3/h ein Sinken der Messwerte des akustischen Feuchtesensors zur Folge hat. Volumenstromänderungen unterhalb 80 m^3/h führen jedoch zu keiner Beeinflussung der Messwerte. Die Ursache hierfür liegt vermutlich in starken Änderungen des Strömungsprofils um den akustischen Feuchtesensor begründet, welche sich nur bei höheren Strömungsge-

schwindigkeiten bemerkbar machen. Dieser Fehler könnte vermutlich durch Wahl einer größer dimensionierten Messzelle behoben werden.

Trotz einer Vielzahl von Wiederholungsmessungen war es nicht möglich, eine zweidimensionale Korrekturfunktion für die Messungen mit dem akustischen Feuchtesensor zu ermitteln, welche die aufgezeigten Abweichungen zufriedenstellend kompensieren könnte. Aus diesem Grund ist es lediglich möglich, mit dem akustischen Feuchtesensor den qualitativen Verlauf der Abluftfeuchte zu messen, sofern Sensortemperatur und Volumenstrom konstant sind.

6.3.2 Relative Feuchte innerhalb und außerhalb des Feuchtemesskopfes

Die Temperaturunterschiede zwischen der strömenden Luft und dem sensitiven Bereich der Feuchtesensoren beweisen, dass im Inneren der Staubschutzfilter eine andere relative Feuchte vorliegen muss als in der Umgebung. Aus den Messdaten des Abluftfeuchtefühlers wird der Feuchtegehalt berechnet, welcher über den Rohrquerschnitt konstant ist. Mit diesem Wert, der Temperatur des Abluftstroms und dem Absolutdruck kann dann die relative Luftfeuchtigkeit der Abluft errechnet werden:

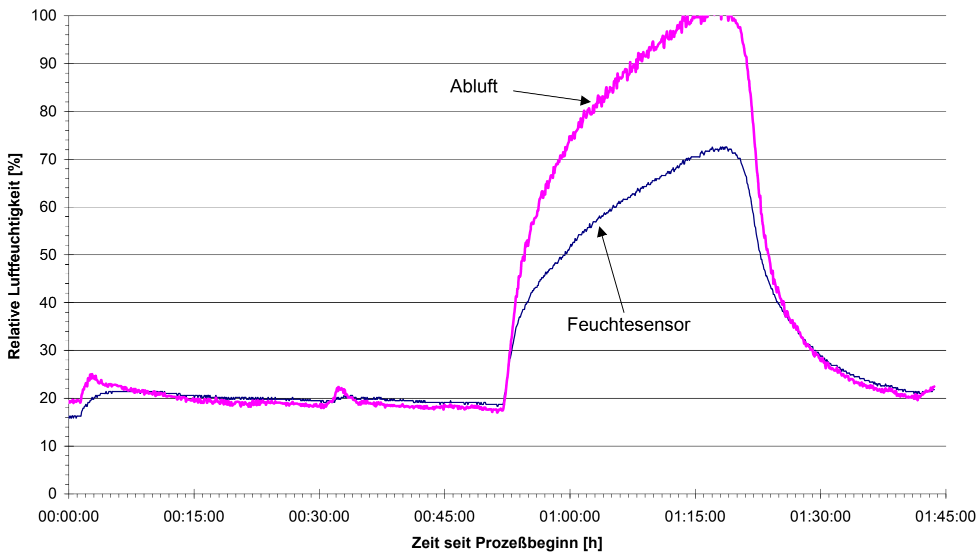


Abbildung 6-17 Relative Feuchten innerhalb des Feuchtesensors und der Abluft

Aus der Abbildung 6-17 kann entnommen werden, dass die Abweichung zwischen dem vom kapazitiven Feuchtesensor ermittelten Messwert und der tatsächlichen relativen Feuchte der Abluft bis zu 30 % beträgt. Dieser instrumentell bedingte Fehler nimmt mit hohen Abluftfeuchten und niedrigen Temperaturen stark zu. Die Ergebnisse verdeutlichen, dass mit den Feuchtesensoren allein (also ohne zusätzlichen Temperaturfühler im Messmedium) die relative Luftfeuchtigkeit nicht richtig bestimmt werden kann. Mit der in dieser Arbeit verwendeten Instrumentierung ist es jedoch möglich, sowohl den Feuchtegehalt als auch die relative Feuchte des Messmediums richtig zu ermitteln.

6.3.3 Ansprechverhalten der kapazitiven Feuchtesensoren

Das Einsprühen von Wasser in den mit einer Zulufttemperatur von 60 °C thermisch äquilibrierten GPCG erfolgt mit unterkritischer Sprührate, so dass sämtliche Flüssigkeit sofort verdampft. Da sich daher in der Anlage kein kondensiertes Wasser befindet, wird am Ende der Sprühphase ein abrupter Abfall der Abluftfeuchtigkeit erwartet. Die vom kapazitiven Feuchtesensor erhaltenen Messkurven zeigen, dass die relative Abluftfeuchte unmittelbar mit dem Beginn der Sprühphase ansteigt und auch sofort nach Sprühende wieder absinkt:

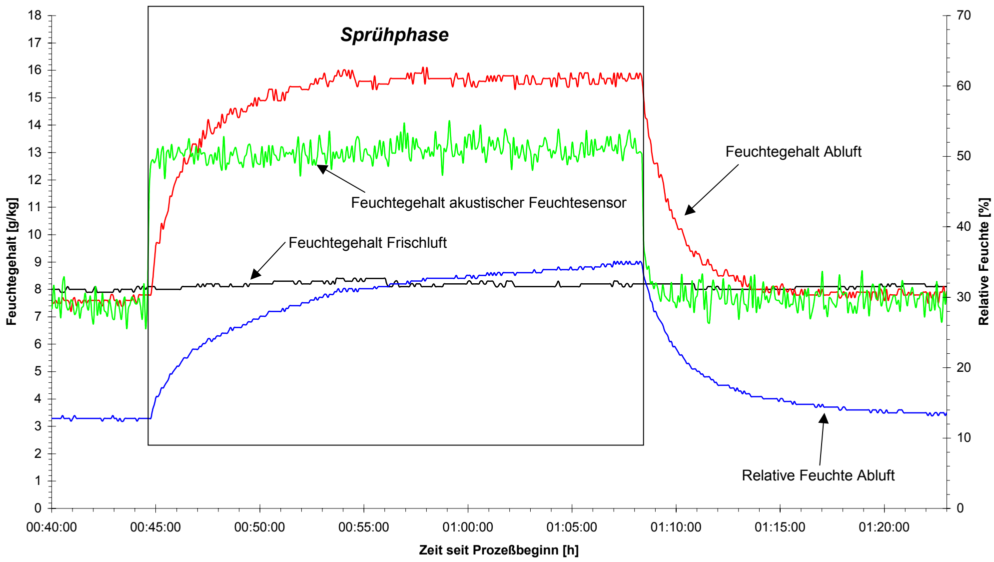


Abbildung 6-18 *Messwerte vom Einsprühen von Wasser in den leeren GPCG*

Für die Überprüfung dieses dynamischen Verhaltens wäre ein alternativer Messumformer notwendig, welcher ebenfalls als Messsignal die relative Feuchte ausgibt und eine sehr kurze Ansprechzeit aufweist. Da ein derartiger Sensor derzeit nicht verfügbar ist, wird die Überprüfung der Richtigkeit der Messwerte des kapazitiven Feuchtefühlers hier indirekt durchgeführt: Der aus der Umrechnung von relativer Abluftfeuchte, Absolutdruck und Sensortemperatur berechnete Abluftfeuchtegehalt wird mit den Messwerten des akustischen Feuchtesensors verglichen. Dessen Messkurve belegt, dass der Feuchtegehalt der Abluft eine Sprungfunktion darstellt: Unmittelbar mit Beginn der Sprühphase steigt der Abluftfeuchtegehalt sprunghaft auf einen konstanten Wert an; mit Ende des Einsprühens von Wasser sinkt der Abluftfeuchtegehalt rapide auf sein Ausgangsniveau ab. Dies steht in Übereinstimmung mit der erwarteten Entwicklung. Der aus den Messdaten des kapazitiven Feuchtefühlers errechnete Verlauf des Abluftfeuchtegehalts weist hingegen zeitliche Verzögerungen auf: Erst acht Minuten nach Beginn des Sprühens wird ein konstanter Abluftfeuchtegehalt gemessen; mit dem gleichen zeitlichen Verzug wird nach Ende der Sprühphase der Feuchtegehalt der Frischluft wieder erreicht. Die zeitliche Verzögerung des Messsignals der relativen Abluftfeuchte liegt sowohl im Ansprechverhalten des Sensors selbst als auch in der Verschleppung durch das Sinterfilter begründet.

6.3.4 Versuch der Entschmierung der Messkurven

Ist die Ansprechzeit eines Messumformers größer als das Zeitinterval, innerhalb dessen sich der zu messende Parameter ändert, so wird die Messkurve verzerrt; das Messsignal wird gleichsam verschmiert. Von HEMMINGER ist ein mathematisches Verfahren zur sogenannten **Entschmierung** (synonym *„dynamische Korrektur", „Deconvolution"*) von Messkurven in der thermischen Analyse entwickelt worden[195, 196, 197]. Eine vorgegebene Testfunktion führt zu einer sprunghaften Änderung des Messsignals (**Sprungfunktion**). Aus dem Verlauf der resultierenden Messkurve, die als **Antwortfunktion** bezeichnet wird, soll auf die ursprüngliche Testfunktion geschlossen werden. Der Teil der Sprungfunktion, der vom Messsystem verschluckt wurde, wird über einen Korrekturterm rekonstruiert:

$$Z_{Test}(t) = Z_{Antwort}(t) + \tau \cdot \frac{dZ_{Antwort}(t)}{dt} \qquad (6.44)$$

$Z_{Test}(t)$ *Entschmierte Testfunktion*
$Z_{Antwort}(t)$ *Verschmierte Antwortfunktion*
τ *Zeitkonstante*

Je schneller die Änderung des Messsignals erfolgt, desto mehr verschluckt das Messsystem. Da in einem solchen Fall aber auch die Ableitung der Antwortfunktion groß ist, wird der Korrekturterm ebenfalls groß und kompensiert damit die Verschmierung. Die Zeitkonstante τ muss für jedes Messsystem individuell bestimmt werden. Durch Division der Funktionswerte $Z_{Antwort}(t)$ durch den Maximalwert der Messung wird die normierte Antwortfunktion $Z_{norm}(t)$ erhalten. Es wird angenommen, dass $Z_{norm}(t)$ als Summe von Exponentialfunktionen dargestellt werden kann gemäß:

$$Z_{norm}(t) \equiv \frac{Z_{Antwort}(t)}{Z_{\max}} = \sum_{i=1}^{n} a_i \cdot e^{-\frac{t}{\tau_i}} \qquad (6.45)$$

Für die Zeitkonstante gilt:

$$\tau = \sum_{i=1}^{n} \tau_i \qquad (6.46)$$

Aus der Auftragung der logarithmierten normierten Antwortfunktion über der Zeit t wird eine Kurve erhalten, die für große t asymptotisch in eine Gerade der Steigung $-t/\tau_1$ übergeht. Für die meisten Anwendungen genügt die Bestimmung des ersten Summanden τ_1 als gute Näherung für die Zeitkonstante τ. Damit sind alle Parameter gegeben, um die Entschmierung nach Gleichung 6.45 durchzuführen.

Wie umfangreiche Untersuchungen belegen, ist eine solche klassische Entschmierung aus folgenden Gründen für das vorliegende Messproblem nicht anwendbar:

- Die Entschmierung nach HEMMINGER setzt einen streng monoton steigenden, konkaven Verlauf der Messkurve voraus. Die Antwortfunktionen der kapazitiven Feuchtesensoren weisen hingegen einen sigmoidalen Verlauf auf: Die Zunahme der Steigung der Messkurve bis zum Wendepunkt hin verhindert die Entschmierung
- Die klassische Entschmierung ist für peakförmige Messkurven, wie sie in der thermischen Analyse[198] oder in der Ionenbeweglichkeitsspektroskopie[199] vorkommen, konzipiert. Bei mehrstufigen Trocknungsprozessen, die bei WSG-Prozessen häufig zu finden sind, liegen jedoch auch real langsam abklingende Messkurven vor. Eine Entschmierung würde hierbei zu einer falschen Interpretation der Messergebnisse führen
- Das Ansprechverhaltern der kapazitiven Feuchtesensoren ist auch abhängig vom Anströmverhalten. Es müsste daher für jeden Strömungszustand ein eigenes Zeitverhalten der Sensorik beschrieben und individuell entschmiert werden

1992 wurde von VOIGT ein Patent zur dynamischen Korrektur von Messfehlern bei Polymer-Feuchtesensoren angemeldet[200]. Durch Anwendung eines speziellen Algorithmus gelang es, Langzeit-Hysterese-Effekte zu kompensieren[201]. Eine Anwendung auf dynamische Effekte im Minutenbereich ist jedoch nicht möglich. BROEDEL meldete 1998 ein Patent zur Erhöhung des Ansprechverhaltens beliebiger Arten von Sensoren an[202]. In Bezug auf Feuchtemessfühler ist die Anwendung dieser mathematischen Korrektur der Messkurven jedoch nur bei konstanten Strömungsverhältnissen möglich.

6.3.5 Bewertung des Ansprechverhaltens der Feuchtesensoren

Wie die vorangegangenen Messungen zeigen weisen die verwendeten kapazitiven Feuchtesensoren als Nachteil die langen Ansprechzeiten auf. Unter den extremen Bedingungen des Einsprühens von Wasser in eine leere Anlage macht sich die daraus resultierende Verschmierung der Messkurve bis zu acht Minuten bemerkbar. Es ist jedoch zu erwarten, dass die Änderungen der Abluftfeuchte während eines Granulationsprozesses aufgrund von Absoptions- und Desorptionsvorgängen am Schüttgut deutlich langsamer von statten geht. Hier sollte die Verschmierung der Messsignale deutlich weniger Bedeutung haben. Ferner sollte sich die Verschmierung der Abluftfeuchtemesskurve zu Begin und Ende der Sprühphase kompensieren. Das Ansprechverhalten der kapazitiven Feuchtesensoren wird daher als dem Messproblem gerade noch angemessen erachtet.

6.4 TROCKNUNGSVERSUCHE

6.4.1 Trocknung von Baumwolle

Aufgrund der im Vergleich zu einer Wirbelschicht geringen Oberfläche und dem sehr guten Wasserbindevermögen von Baumwolle läuft die Trocknung

sehr viel langsamer als bei konventionellen Schüttgütern ab. Dies zeigt sich in der Auswertung der Versuchsergebnisse bereits daran, dass die Abluftfeuchte nur Werte um 25 % annimmt und damit weit von der Sättigung entfernt ist:

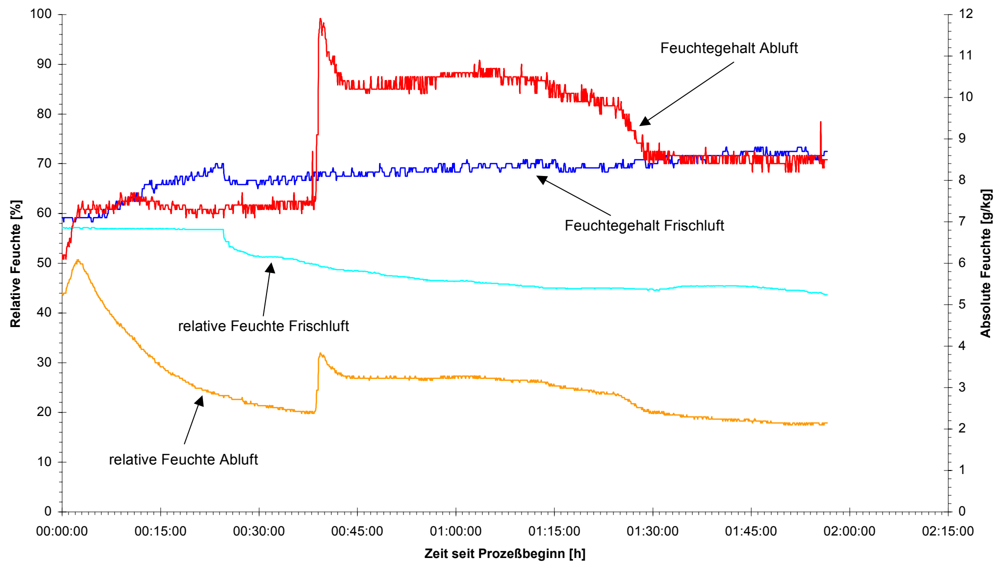


Abbildung 6-19 *Luftfeuchtigkeiten*

Während dieses Versuchs wurden aus dem feuchten Baumwolltuch 155,6 g Wasser entfernt (Bestimmung mittels Rückwägung). Das trockene Material hat eine Masse von 18,0 g. Die Massenbilanzierung liefert folgendes Ergebnis:

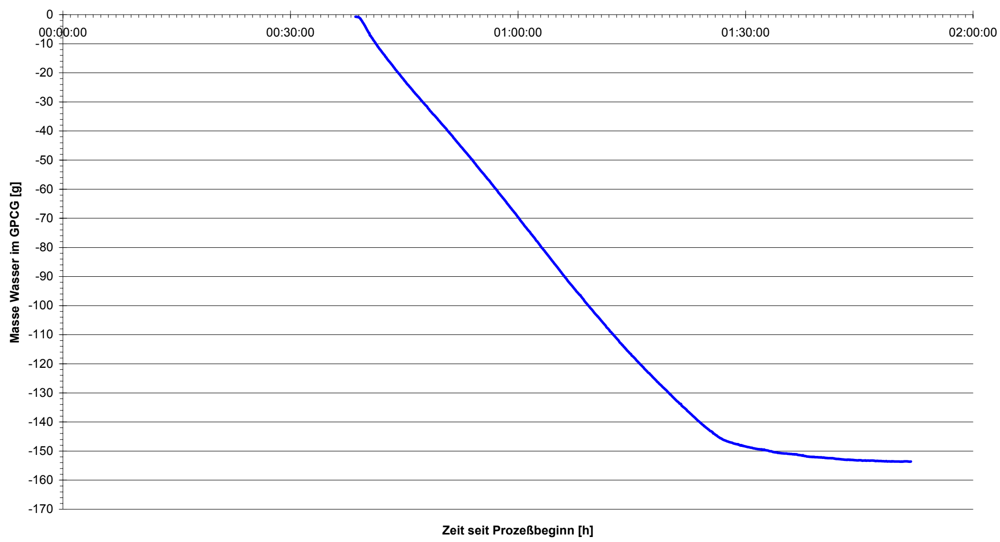


Abbildung 6-20 Massenbilanzierung des Trocknungsprozesses

Laut Bilanzierungsrechnung werden 151 g Wasser entfernt, das entspricht einer Wiederfindungsrate von 97 %.

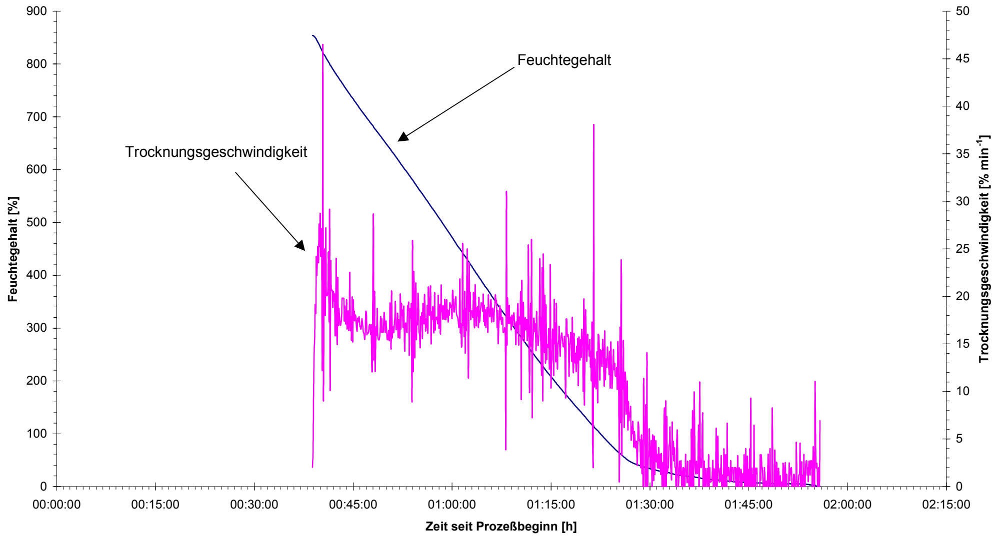


Abbildung 6-21 Trocknungsverlaufskurve von Baumwolle

Aus der Trocknungsverlaufskurve kann entnommen werden, dass das Baumwollmaterial die Feuchtigkeit sehr konstant abgibt. Diese Ergebnisse beweisen, dass auch ein sehr langsamer Trocknungsprozess durch die verfügbare Instrumentierung des GPCG erfasst und mit der Massenbilanzierungsrechnung richtig interpretiert werden kann.

6.4.2 Befeuchten und Trocknen von Silicagel

Das Ziel dieser Versuchsreihe, eine Modellsubstanz mit gutem Wasseraufnahmevermögen unter den Bedingungen eines Standardgranulationsprozesses zu befeuchten und zu trocknen sowie gleichzeitig Wägungen der Gesamtmasse des feuchten Stoffes durchzuführen, konnte nicht erreicht werden: Das Silicagel unterliegt bei diesen Wirbelschichtbedingungen einem starken Abrieb; die entstandenen feinen Bruchstücke adhärieren im feuchten Zustand an den Gefäßwänden, so dass eine quantitative Entnahme des Schüttguts nicht möglich ist. Lediglich der Endpunkt der Trocknung kann mit dem Farbumschlag von Rosa nach Blau visuell gut erkannt werden.

6.5 DEUTUNG DER MESSERGEBNISSE EINES GRANULATIONSPROZESSES

Im folgenden werden die Verläufe der Messwerte sämtlicher am GPCG installierter Sensoren während eines Standardgranulationsprozesses erläutert. Der Prozess lief nach folgendem Zeitschema ab:

Phase 1.a	0 .. 30 min	Aufheizen und Äquilibrieren der Anlage
Phase 1.b	30 min 32 .. 0:52 min	Prozessunterbrechung zum Einfüllen der Primärpartikeln Mischen des Schüttgutes
Phase 2	0:52 .. 1:13 h	Sprühphase mit Granulation
Phase 3	1:13 ..1:42 h	Trocknung des Produkts

Die Skalierung der Zeitachsen sind in allen folgenden Diagrammen einheitlich gehalten.

6.5.1 Volumenstrom

Der gesamte Granulationsprozess wird mit einem konstanten Volumenstrom-Sollwert von 76 m^3/h gefahren. Da sich im Verlauf der Granulation Filterwiderstände und der Strömungswiderstand über das Schüttgut ändern, muss die Steuerung des GPCG über die Abluftklappenstellung den Volumenstrom permanent nachregeln, wie folgendes Diagramm verdeutlicht:

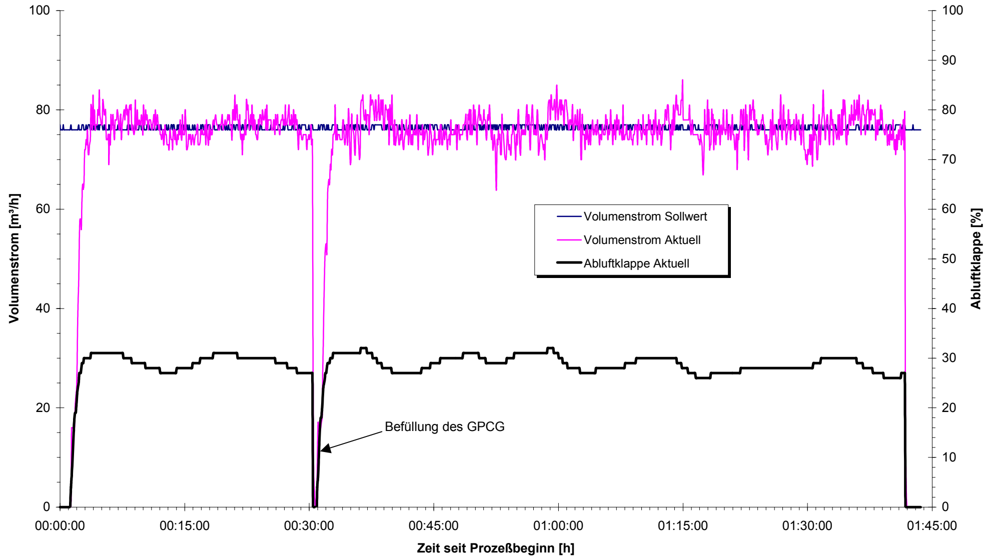


Abbildung 6-22 Volumenstrom und Abluftklappenstellung

Der zeitliche Mittelwert des Volumenstromes liegt mit 76,16 m^3/h und einer Standardabweichung von 2,83 genau im geforderten Bereich. Die GPCG-Steuerung erreicht also trotz variierender Strömungswiderstände einen konstanten Volumenstrom*.

6.5.2 Sprühluftdruck

Solange nicht gesprüht wird, ist an der Sprühdüse ein Freiblasdruck von 1,5 bar Überdruck angelegt, um ein Verstopfen der Auslassöffnung zu verhindern. Das Vorliegen eines Überdrucks bedeutet nicht automatisch auch eine Pressluftströmung an der Sprühdüse: sollte letztere tatsächlich verstopft sein, würde dennoch der Freiblas- bzw. der Sprühluftdruck angezeigt werden. Die Funktionsfähigkeit der Sprühdüse lässt sich jedoch durch visuelle Beobachtung bzw. durch Abnahme der Sprühflüssigkeitsmasse im Ansatzgefäß überprüfen.

* *Ein konstanter Volumenstrom erleichtert die Interpretation der Massenbilanzierungsrechnung. Es sind aber auch Versuche mit variierendem Volumenstrom problemlos und erfolgreich bilanzierbar*

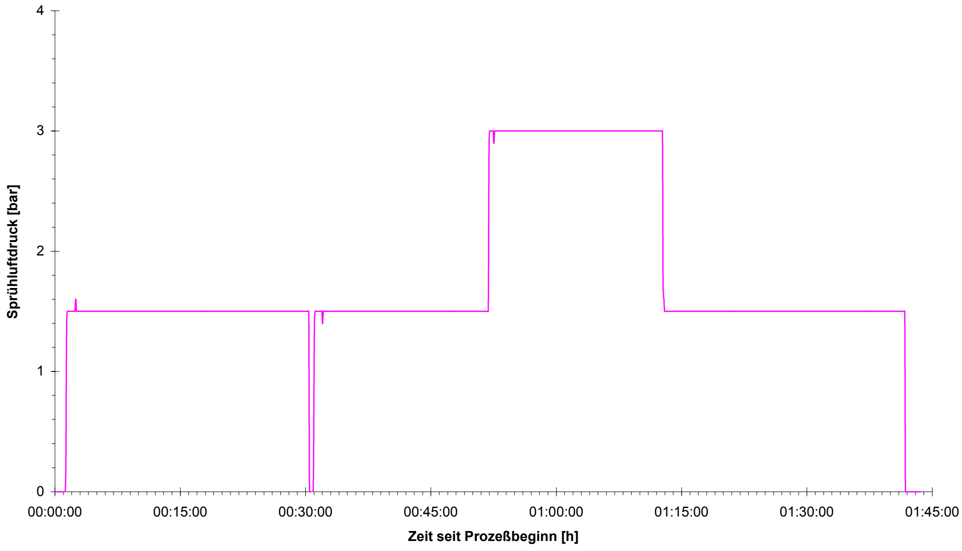


Abbildung 6-23 *Sprühluftdruck*

Aus dieser Versuchsbeobachtung resultiert, dass der Sprühluftdruck sehr präzise geregelt wird.

6.5.3 Sprühflüssigkeitsgewicht und Sprührate

Aus der Differenz des Sprühflüssigkeitsgewichtes zu Anfang und zu Ende der Granulation resultiert ein Bindemitteleintrag von 520 g.

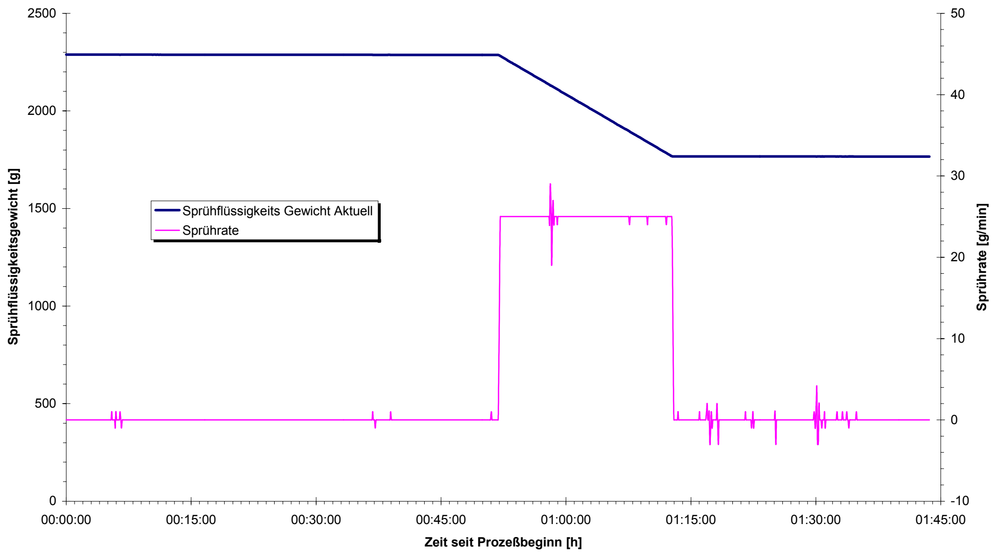


Abbildung 6-24 *Sprühflüssigkeitsgewicht und Sprührate*

Die Schwankungen in der Sprührate liegen nicht im Förderverhalten der Schlauchpumpe, sondern in Erschütterungen der Waage begründet. Diese zufälligen Streuungen heben sich im Mittel auf, wie die Integration dieser Messwerte zeigt:

$$\frac{5}{60}\min\cdot\sum_{t=0}^{105\,\min}\dot{S}(t)=522\,g$$

6.5.4 Temperatur der Zuluft, des Produkts und des akustischen Feuchtesensors

Nach einer etwa fünfminütigen Anlaufphase vermag die Steuerung der Heizung, die Zulufttemperatur exakt auf den Sollwert von 50 °C mit einer Standardabweichung von nur 0,35 °C über den gesamten Prozess hinweg zu regeln. Nach dem Befüllen der Anlage mit den Primärpartikeln dauert es ca. 6 Minuten, bis das Schüttgut aufgeheizt ist. Unmittelbar nach Beginn der Sprühphase sinkt die Produkttemperatur um über 20 °C ab und verbleibt auf diesem Niveau bis zum Ende der Sprühphase. Diese Abkühlung liegt in der Verdunstungskälte des Bindemittels begründet. Solange aus dem Granulat noch Feuchtigkeit herausgetrieben wird, bleibt die Produkttemperatur niedrig. Der Anstieg dieses Messwertes ist ein Indiz für das Ende des Trocknungsprozesses.

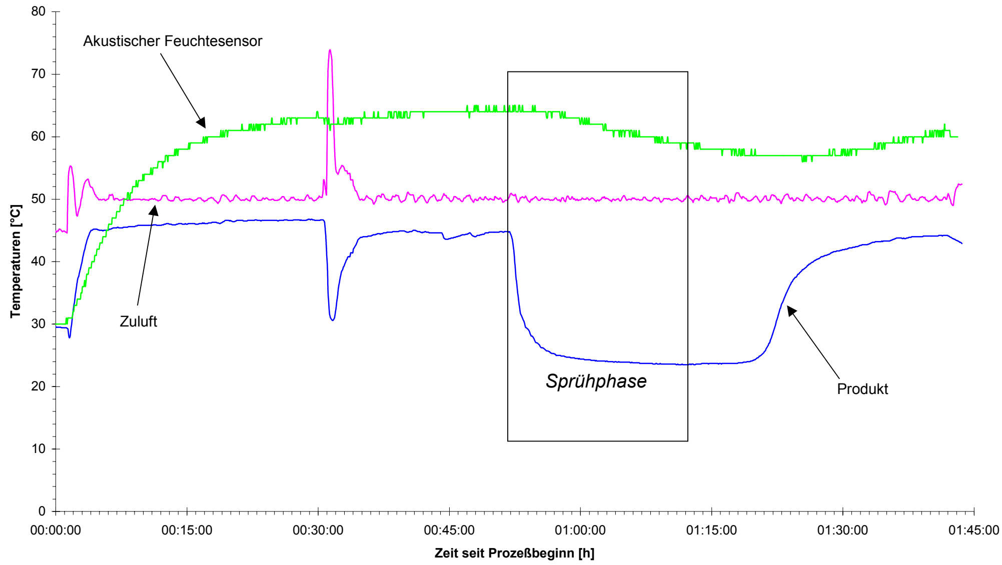


Abbildung 6-25 Zuluft- Produkt und Ablufttemperatur

Die Temperatur im akustischen Feuchtesensor sinkt während der Granulationsphase deutlich ab, um erwartungsgemäß mit dem Ende der Trocknungsphase wieder anzusteigen.

6.5.5 Temperaturen an den Feuchtesensoren

Wie zu erwarten war, differiert der Temperaturverlauf im Inneren der Feuchtefühler deutlich von dem der vorbeiströmenden Luft. Dies liegt im dämpfenden Effekt der Staubschutzfilter sowie der Wärmeleitung der Sensorhalter begründet.

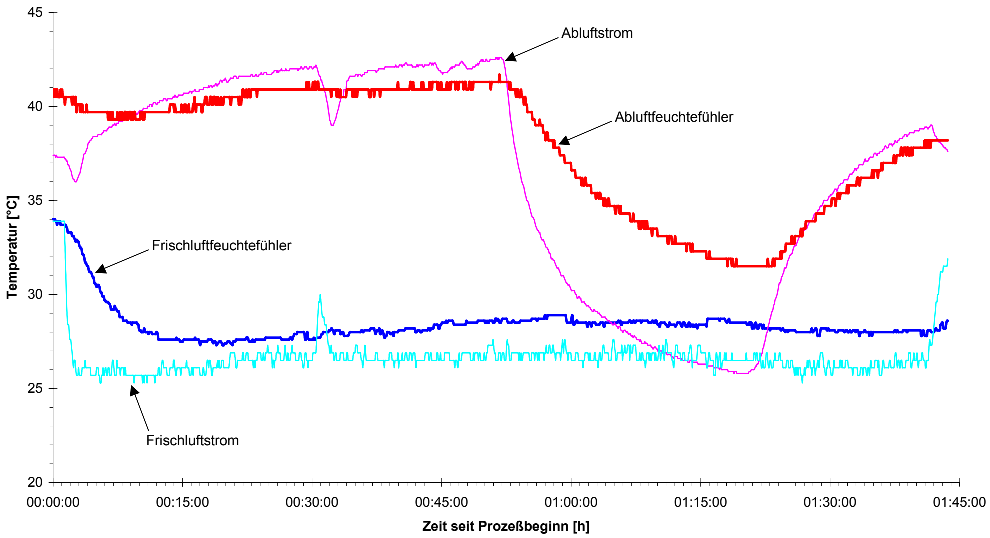


Abbildung 6-26 *Temperaturen an den Feuchtesensoren*

Die Abweichung der Temperatur im Frischluftfeuchtefühler zu der im Frischluftstrom beträgt maximal 2 °C. Die Richtung der Abweichung variiert dabei von Experiment zu Experiment. Die wahre Ablufttemperatur liegt während der Mischphase oberhalb des Wertes des Abluftfeuchtefühlers. Während der Sprühphase fällt die Ablufttemperatur um 17 °C ab; die Temperaturabnahme im Abluftfeuchtefühler setzt zwar zeitgleich ein, beträgt hier aber nur 10 °C. Die Konsequenzen dieses Sachverhalts werden bei der Betrachtung der relativen Feuchten offenkundig.

6.5.6 Temperatur im Inneren der Anlage

Um die thermische Belastung der Sensorik im Maschinengehäuse des GPCG zu quantifizieren, wird der externe Temperaturfühler so im Innenraum der Anlage platziert, dass die dortige Lufttemperatur gemessen wird.

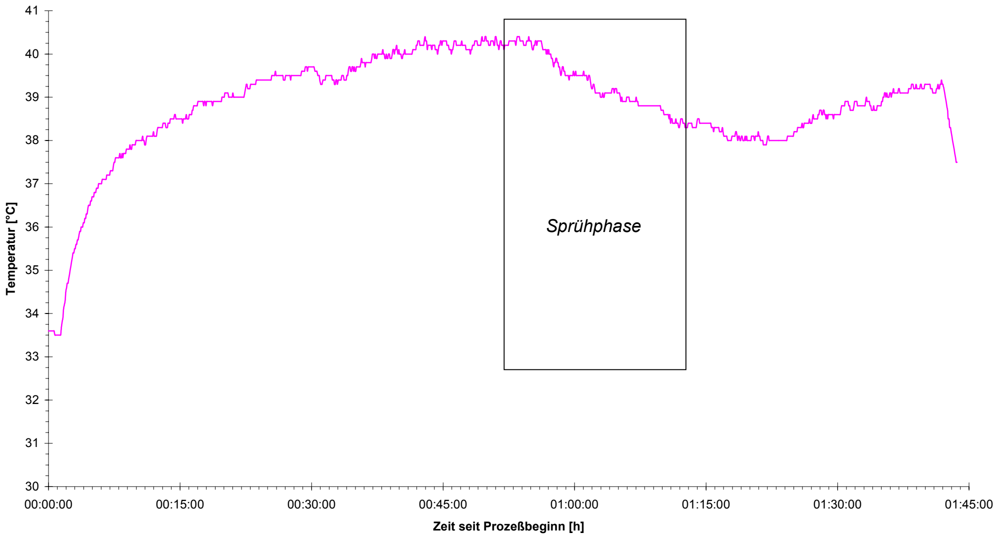


Abbildung 6-27 *Lufttemperatur im Inneren des GPCG*

Wie diese Versuchsergebnisse zeigen, steigt die Temperatur im Inneren der Anlage trotz Belüftung während eines Granulationsprozesses auf über 40 °C an. Bei Messungen im Winter mit höheren Zulufttemperaturen wurden Temperaturschwankungen von über 25 °C gemessen. Dies beeinflusst das Wärmeleitungsverhalten der Sensoren. Weiterhin kann der Abbildung entnommen werden, dass das Einsprühen von Bindemittellösung zu einem deutlichen Temperaturabfall auch im Inneren der Anlage führt. Nach Abschluß der Trocknungsphase steigt die Temperatur erwartungsgemäß wieder an.

6.5.7 Differenzdrucke der Rückhaltefilter

Die beiden Rückhaltefilter werden alle 25 Sekunden asynchron für jeweils 6 Sekunden abgerüttelt. Während dieser Zeit wird die Kammerklappe hinter dem zu reinigenden Filter geschlossen; der gesamte Volumenstrom geht jetzt durch das jeweils andere Filter. Der Differenzdruck über das abzurüttelnde Filter geht in dieser Zeit auf Null zurück, in der anderen Filterhälfte steigt entsprechend dem regional erhöhten Volumenstrom der Filterwiderstand stark an. Das folgende Diagramm zeigt die Differenzdrucke über die beiden parallel geschalteten Rückhaltefilter in logarithmischer Darstellung. Die stärker hervorgehobene Kurve bildet den Mittelwert von jeweils 10 Messwerten ab.

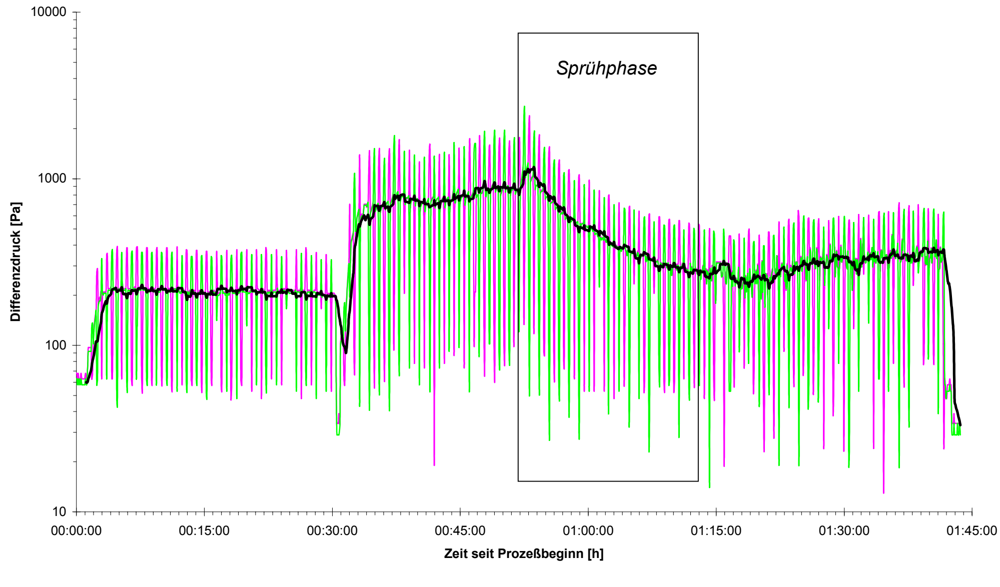


Abbildung 6-28 *Differenzdruck über die Rückhaltefilter*

Der Differenzdruck, der während der Äquilibrierphase gemessen wird, beschreibt den Strömungswiderstand der reinen Rückhaltefilter bei einem Volumenstrom von 75 m^3/h. Nach Zugabe der Primärpartikeln steigt der Filterwiderstand sofort auf den fünffachen Wert an, da der Feinanteil des Schüttgutes die Filterporen verstopft. Unmittelbar nach Beginn der Einsprühens des Bindemittels kommt es in der Wirbelschicht zur Aufbaugranulation. Die noch auf der Filteroberfläche angelagerten feinen Partikeln werden durch das Abrütteln des Filters dem Granulationsprozess wieder zugeführt. In der Folge nimmt der Feinanteil des Schüttgutes stark ab und der Strömungswider-

stand der Rückhaltefilter sinkt deutlich unter den Wert während der Mischphase. In der Trocknungsphase kommt es zu mäßigem Abrieb der Granulen; der Feinanteil steigt wieder geringfügig an und als Folge davon auch der mittlere Widerstand der Rückhaltefilter.

6.5.8 Differenzdruck über den Anströmboden

Da das Schüttgut in der Wirbelschicht durch den Durchströmungswiderstand „getragen“ wird, ist der Druckverlust über den Anströmboden Δp ein Maß für die Beschaffenheit des Granulates. Der konstante Wert während der Äquilibrierphase beschreibt den durch den Siebboden selbst verursachten Strömungswiderstand. Nach Einbringen des Schüttgutes erreicht Δp ein temporäres Maximum. Sobald die Rückhaltefilter mit den feinen Partikeln belegt sind, ist weniger Masse zu fluidisieren, und in der Folge sinkt Δp wieder etwas.

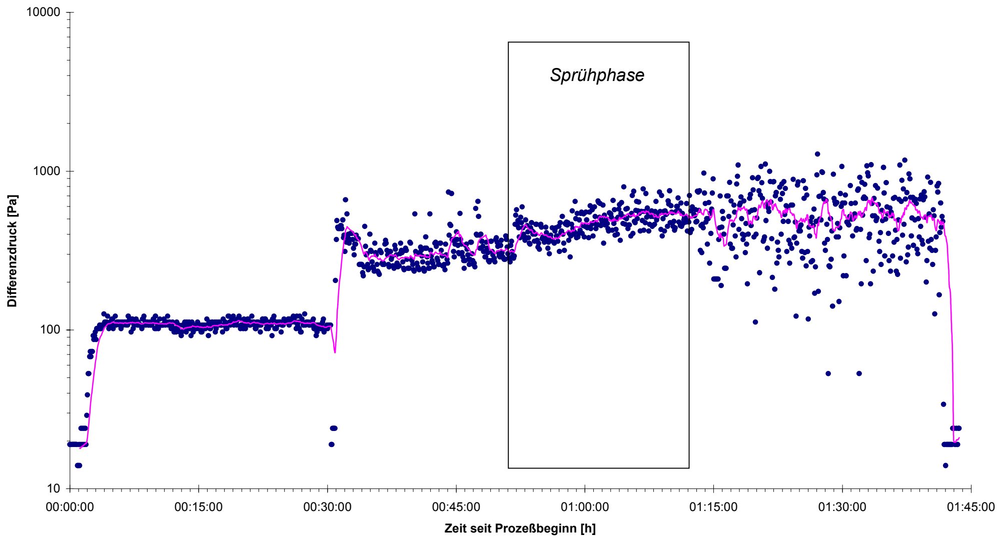


Abbildung 6-29 *Differenzdruck über dem Anströmboden (die durchgezogene Line repräsentiert den Mittelwert über 15 Messpunkte)*

Während der Sprühphase macht sich die mit steigendem Wassergehalt zunehmende Dichte des Schüttgutes bemerkbar: Da der Volumenstrom konstant gehalten wird, steigt der Strömungswiderstand. Während der Trocknungsphase kommt es zur Überlagerung zweier Effekte: Das Produkt wird leichter, gleichzeitig nimmt jedoch der Feinanteil aufgrund des Abriebs wieder zu. In der Folge bleibt der Druckverlust über den Anströmboden im zeitlichen Mittel konstant.

6.5.9 Absolutdrucke

Der statische Druck an der Einbaustelle des Frischluftfeuchtesensors liegt erwartungsgemäß nur geringfügig unterhalb des Umgebungsdrucks. Bei den vorliegenden experimentellen Bedingungen mit einem konstanten Volumenstrom von 75 m³/h beträgt die Abweichung durchschnittlich 64 Pa mit einer Standardabweichung von ± 13 Pa

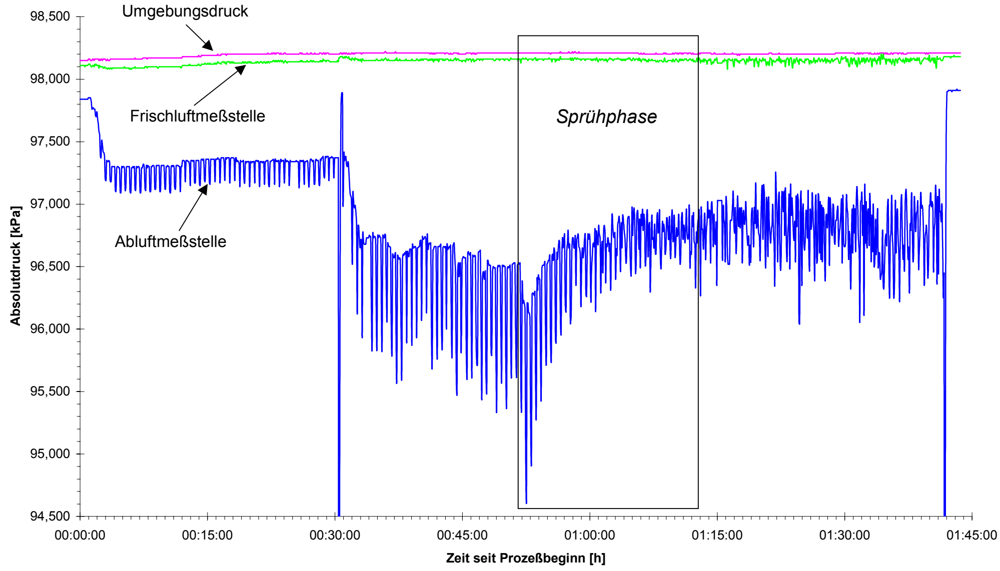


Abbildung 6-30 *Absolutdruckmesswerte*

Der Absolutdruck an der Abluftfeuchtemessstelle liegt bereits während des Leerbetriebs des GPCG um 900 Pa mit einer Standardabweichung von ± 77 Pa unterhalb des Umgebungsluftdruckes. Nach dem Einfüllen des Schüttgutes in den GPCG sink der statische Luftdruck am Abluftfeuchtesensor auf 96,7 % des Umgebungsluftdruckes ab. Sobald mit fortschreitender Aufbaugranulation der Strömungswiderstand der Rückhaltefilter wieder abnimmt, steigt auch der Absolutdruck an der Abluftfeuchtemessstelle wieder an.

6.5.10 Luftfeuchten

Aufgrund der unterschiedlichen Temperaturen an den Messstellen divergieren die relativen Feuchten von Frisch- und Abluft sehr stark.

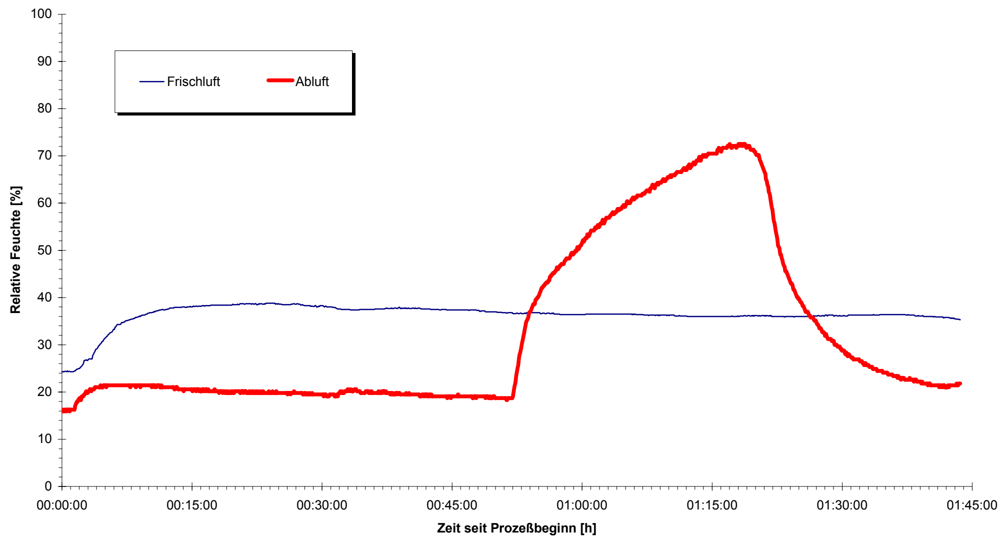


Abbildung 6-31 *Relative Feuchten an den kapazitiven Feuchtesensoren*

Die Umrechnung der relativen Feuchten in Feuchtegehalte liefert die Basis für die Massenbilanzierung.

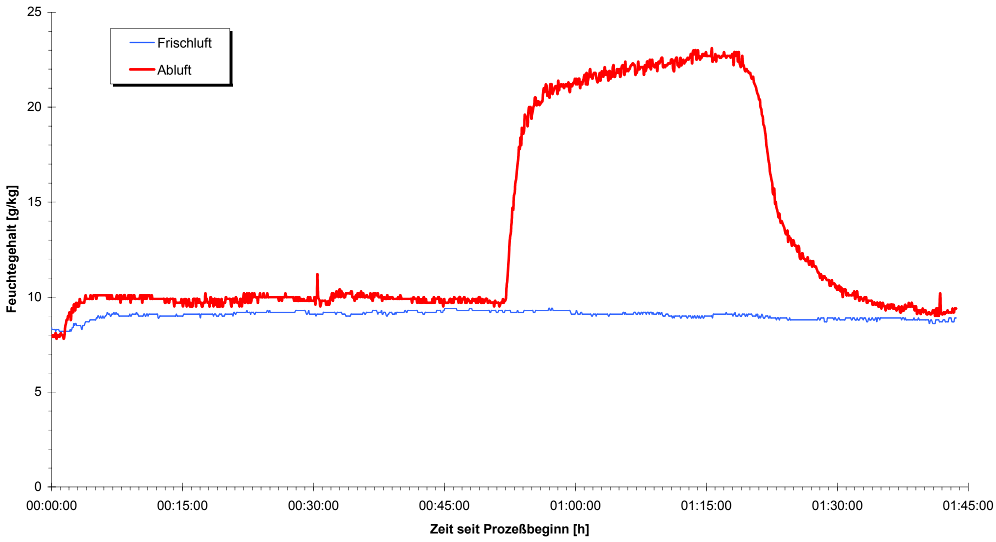


Abbildung 6-32 *Feuchtegehalte*

Aus dem kurzzeitigen Anstieg der Abluftfeuchtekurve nach Zufügen des Schüttgutes kann entnommen werden, dass diesem in der Mischphase Restfeuchtigkeit entzogen wird. Ferner kann aus diesem Kurvenverlauf das Ende der Trocknung erkannt werden: Sobald sich Frischluft- und Abluftfeuchtegehalt nicht mehr statistisch signifikant unterscheiden, kann unter den herrschenden Bedingungen dem Produkt kein weiteres Wasser mehr entzogen werden. Um die Voraussetzungen für die Massenbilanzierung zu schaffen, muss die Abluftfeuchtekurve durch eine Lineartransformation so verschoben werden, dass sie zu Beginn der Sprühphase mit der Frischluftfeuchtekurve zur Deckung kommt.

6.5.11 Granulatfeuchtigkeit

Die mit Hilfe einer Karl-Fischer-Titration ermittelte Größe w_f stellt den Trocknungsverlust der Probe bezogen auf die Masse des feuchten Guts in Prozent dar. Die folgende Zusammenstellung zeigt die Messergebnisse eines Standardgranulationsprozesses:

Tabelle 6-2 *Ergebnisse der KF-Titration für Experiment 0205*

Probe Nr.	Zeit seit Prozessbeginn [min]	Einwaage [mg]	w_f
1	32 (Zugabe Schüttgut)	272	5,308
2	43 (Ende der Mischphase)	357	4,535
3	50	354	5,765
4	58	237	8,922
5	65	317	12,518
6	70 (Ende der Sprühphase)	391	12,607
7	74	474	9,820
8	81	438	5,670
9	99 (Ende der Trocknung)	471	4,792

Am Ende der Mischungsphase ist die Lactose trocken. Der gemessene Trocknungsverlust stimmt mit der Spezifikation des EuAB von 4,5 bis 5,5 % exakt überein. Um basierend auf diesen Messwerten auf die gesamte Masse an Wasser im GPCG zu einem beliebigen Zeitpunkt t schließen zu können, muss zunächst die Masse an wasserfreiem Edukt m_{tr} berechnet werden. Das in den GPCG eingefüllte Schüttgut hat eine Gesamtmasse von 1000 g; der Trocknungsverlust beträgt w_f = 5,308 %. Mit Gleichung 2.6 folgt damit für die Masse an Wasser:

$$m_w = \frac{w_f \cdot m_f}{100} = 53{,}08\,g$$

Die Masse an wasserfreien Partikeln resultiert aus der Differenz:

$$m_{tr} = m_f - m_w = 1000\,g - 53\,g = 947\,g$$

Die Zunahme der Masse an trockenem Schüttgut durch den Auftrag des Bindemittels im Verlauf der Granulation sowie die Abnahme von m_{tr} durch das Probenziehen können vernachlässigt werden. Die Masse an trockenem Schüttgut ist damit für den gesamten Prozess konstant. Durch Einsetzen von Gleichung 2.5 in 2.6 wird folgender Ausdruck erhalten:

$$w_f = 100 \cdot \frac{m_w}{m_w + m_{tr}}$$

Das Auflösen dieses Terms nach m_w liefert einen Ausdruck, der bei Kenntnis von m_{tr} und w_f unmittelbar die Berechnung der Masse an Wasser in der gesamten Anlage erlaubt:

$$m_{Wasser\,im\,Ansatz} = \frac{m_{tr}}{\frac{100}{w_f} - 1} \qquad (6.47)$$

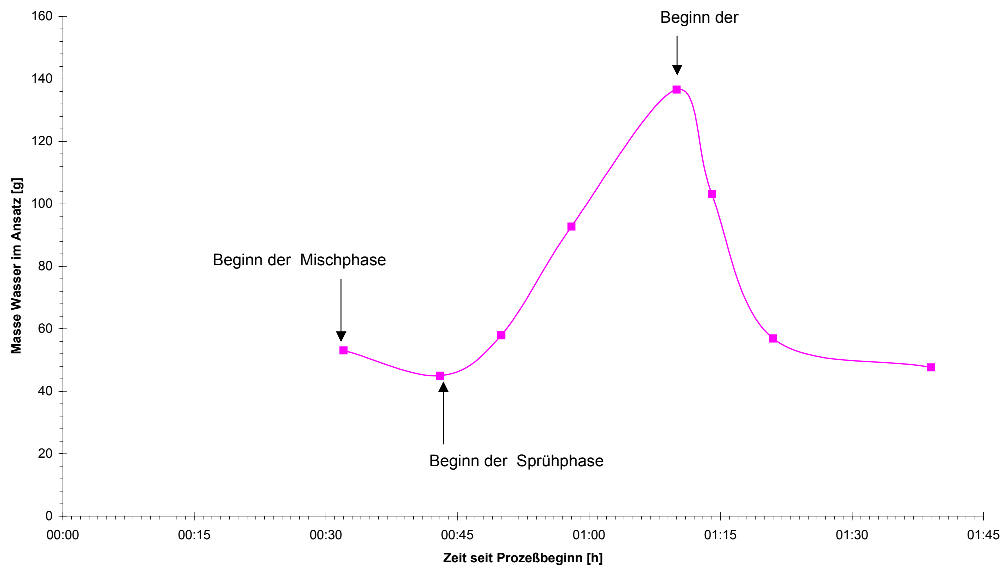


Abbildung 6-33 *Ergebnis der KF-Vergleichsmessungen*

Wie diese Ergebnisse belegen, wird nur eine sehr geringe Wassermasse während der Mischphase entfernt. Während der Granulationsphase kommt es zu einer stetigen Zunahme der Wassermasse im Ansatz; es bildet sich demnach kein Fließgleichgewicht aus. Unmittelbar mit Beginn der Trocknungsphase fällt die $m_{\text{Wasser im Ansatz}}$ sehr stark ab und erreicht den zu Anfang des Versuchs gegebenen Ausgangswert.

Um die Ergebnisse einer KF-Bestimmung mit denen einer Massenbilanzierung vergleichen zu können, muss zu letzteren noch jeweils die Masse an chemisch gebundenem Kristallwasser hinzuaddiert werden. Dennoch werden die Messergebnisse der KF-Bestimmung deutlich unterhalb denen der Massenbilanzierung liegen:

- Die Stichprobengröße zur KF-Bestimmung ist systemimmanent zu klein
- Während der Probenlagerung kann es zu Desorption von Wasser aus dem Probenmaterial kommen
- Trotz der schnellen Probenverarbeitung (ca. 2 Minuten) kommt es zu Wasserverlusten durch Verdampfung
- Im Titrationsgefäß wird stets Klumpenbildung der Probe beobachtet. Dies legt die Vermutung nahe, dass im Inneren dieser Agglomerate Wasser eingeschlossen bleibt, welches der chemischen Umsetzung entzogen wird

Diese Überlegungen verdeutlichen, dass die KF-Vergleichsmessungen die Beschreibung des qualitativen Verlaufs der Masse an Wasser im Ansatz erlauben, für direkte quantitative Bestimmungen aber unzureichend sind.

6.5.12 Massenbilanzierung der Granulierung

Da die Feuchtesensoren nur gasförmiges Wasser erfassen, würde flüssiges Wasser im Bereich der Abluftfeuchtemessstelle zu einem systematischen Fehler in der Massenbilanzierung führen. Aus diesem Grund muss zu Beginn der Massenbilanzierungsrechnung sichergestellt sein, dass die Temperatur am Abluftfeuchtefühler oberhalb der Taupunkttemperatur der Abluft liegt.

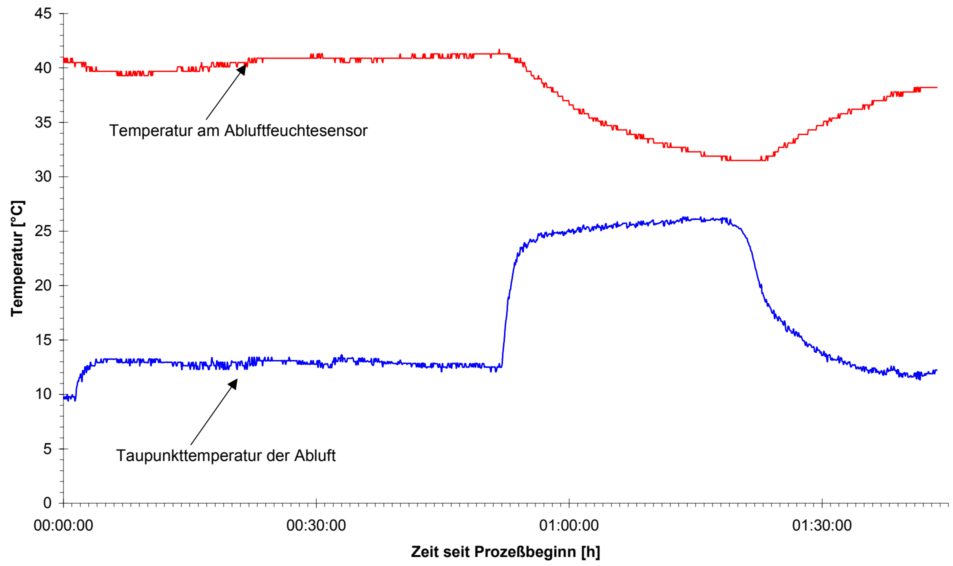


Abbildung 6-34 *Vergleich der Temperatur des Abluftfeuchtesensors zur Taupunkttemperatur*

Aufgrund dieser Messergebnisse kann eine Wasserkondensation am Abluftfeuchtefühler sicher ausgeschlossen werden.

Die Berechnung der Dichte der Frischluft führt erwartungsgemäß zu einem während des gesamten Granulationsprozesses konstanten Wert.

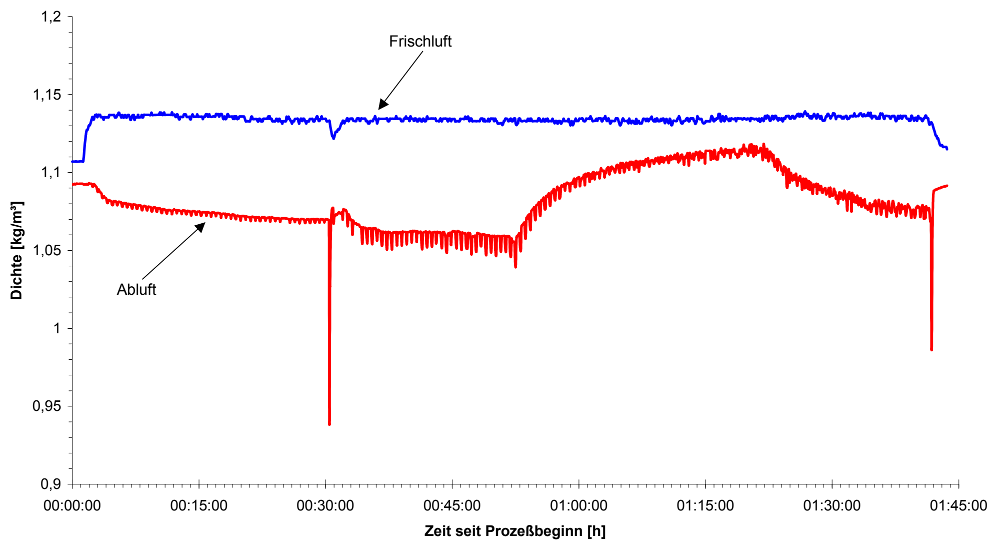


Abbildung 6-35 *Dichten der Frischluft und der Abluft*

Die Dichte der Abluft liegt stets unterhalb der der Frischluft. Dies ist auf den geringeren Absolutdruck, die höhere Temperatur sowie den höheren Feuchtegehalt im Vergleich zur Frischluft zurückzuführen. Während der Sprühpha-

se überlagert der Effekt des Temperaturabfalls der Abluft den des steigenden Feuchtegehalts. In der Konsequenz steigt die Dichte der Abluft während dieser Phase an. Während der Trocknungsphase sinkt die Dichte der Abluft in Folge des Temperaturanstiegs wieder.

Basierend auf diesen Werten wird die eigentliche Massenbilanzierungsrechnung durchgeführt. Das folgende Diagramm gibt die inkrementelle Änderung der Wassermasse wieder:

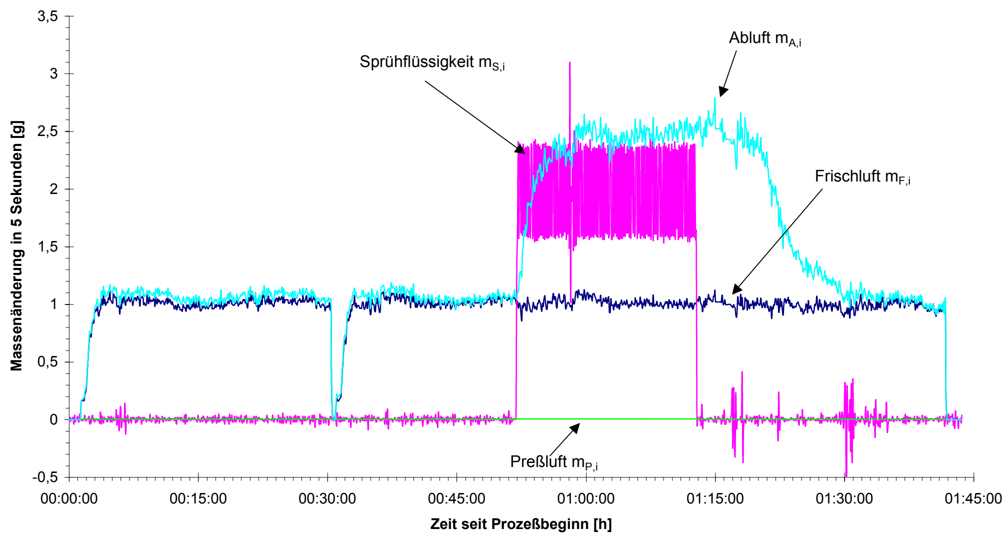


Abbildung 6-36 *Inkrementelle Betrachtung der Massenbilanzierung*

Der Eintrag an Wasser durch die Frischluft bleibt über die gesamte Dauer des Experimentes konstant. Nach der Unterbrechung des Prozesses zum Befüllen des GPCG steigt $m_{F,i}$ simultan zum Volumenstrom wieder auf den Basiswert an. Der Wassereintrag durch die Sprühflüssigkeit $m_{S,i}$ entspricht direkt der Umrechnung der Sprührate auf die Zeiteinheit 5 Sekunden. Der obigen Abbildung kann entnommen werden, dass der Wassereintrag durch die konditionierte Pressluft vernachlässigbar ist.

Durch Aufsummieren der Einzeldaten i kann die Masse an Wasser ermittelt werden, die seit Prozessbeginn bis zum Zeitpunkt t in den GPCG eingebracht bzw. ausgetragen worden ist:

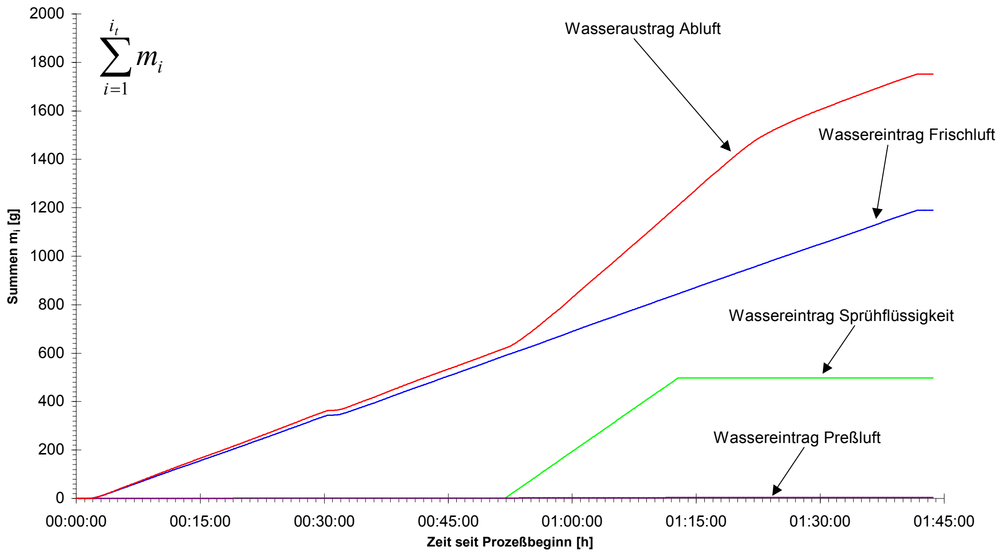


Abbildung 6-37 *Summe des im Verlauf des Prozesses bewegten Wassers*

Dieser Abbildung kann z.B. entnommen werden, dass während des gesamten Prozesses 1189 g Wasser mit der Frischluft in den GPCG eingetragen worden sind. Bezogen auf die Masse an zugeführter Bindemittellösung (520 g) ist dies eine enorme Menge.

Für jedes Zeitintervall i wird aus eingebrachter und herausgeförderter Masse an Wasser die Änderung der Wassermasse in der Anlage ermittelt. Die abschließende Rechenoperation besteht darin, diese Veränderungen aufzusummieren, um damit die Masse an Wasser im GPCG zu einem beliebigen Zeitpunkt t zu ermitteln. Wie die Fehlerrechnung belegt hat, ist ein maximaler zufälliger Fehler von 0,2 g für die Änderung im Zeitintervall i anzusetzten. Es wird daher eine bedingte Summierung durchgeführt: Nur wenn die Änderung größer als 0,2 g ist, geht sie in die Berechnung von $m_{\text{Wasser im Ansatz}}(t)$ ein.

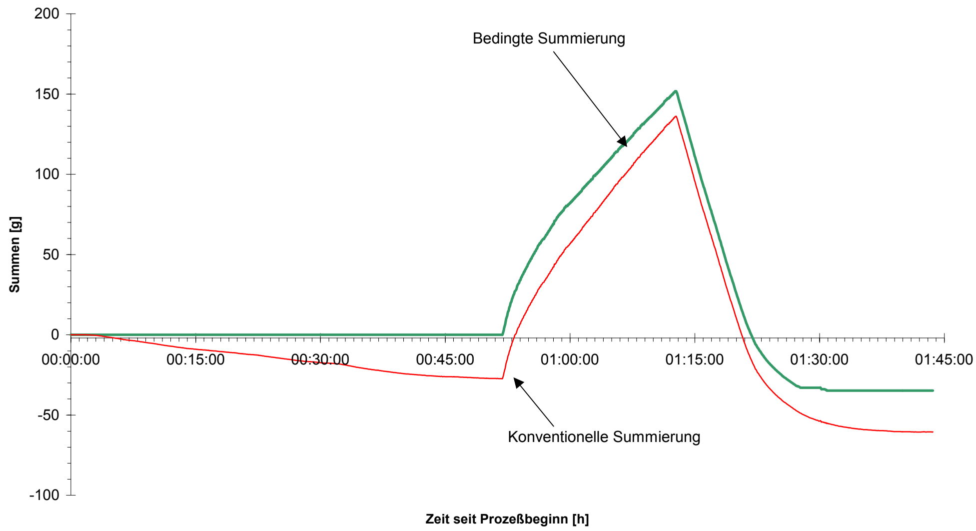


Abbildung 6-38 *Ergebnis der Massenbilanzierung*

Dem Ergebnis der Massenbilanzierung wird entnommen, dass der Feuchtegehalt w_{tr} des Schüttgutes ab dem Beginn der Sprühphase kontinuierlich zunimmt, um – erwartungsgemäß – am Ende dieser Phase seinen Maximalwert zu erreichen. Idealerweise sollte die Trocknungsverlaufskurve wieder auf das Niveau des Beginns der Sprühphase zurückfallen. Die Abweichung von 30 g muss mit der vorliegenden Messanordnung als statistischer Fehler akzeptiert werden.

Abschließend sei kurz auf die Trocknungskinetik dieses WSG-Prozesses eingegangen. Da die Trocknungsgeschwindigkeit gemäß (2.6) als Differenzenquotient aus Feuchtegehalt und Zeit definiert ist, muss zunächst die Trocknungsverlaufskurve $w_{tr}(t)$ ermittelt werden; danach erfolgt die Ableitung dieser Kurve nach der Zeit:

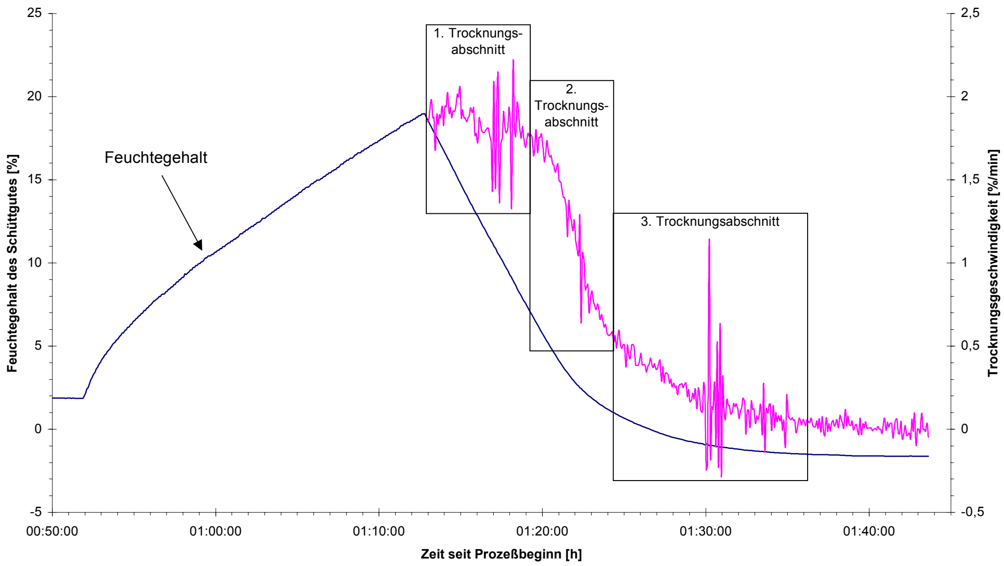


Abbildung 6-39 *Trocknungsverlaufskurve und Trocknungsgeschwindigkeit*

Dieser Abbildung kann entnommen werden, dass der erste Trocknungsabschnitt, in dem die freie Feuchte an der Oberfläche der Partikeln sowie an den Behälterwänden verdunstet, ca. 7 Minuten dauert. Diese Phase ist durch eine konstante Trocknungsgeschwindigkeit gekennzeichnet. Das Trocknungsgut hat in diesem Zeitfenster die adiabatische Beharrungstemperatur. Der Knickpunkt in der Trocknungsverlaufskurve markiert das Ende dieses Stadiums. Im zweiten Trocknungsabschnitt, welcher durch eine stark abfallende Trocknungsgeschwindigkeit charakterisiert ist, wird das kapillar gebundene Wasser verdunstet.

Der dritte Trocknungsabschnitt wird durch die asymptotische Annäherung der Trocknungsgeschwindigkeit an den Wert Null beschrieben. Während dieser Phase, die hier ca. 12 Minuten dauert, wird hygroskopisch gebundenes Wasser entzogen.

6.6 EIGENSCHAFTEN DES STANDARD-GRANULATES

6.6.1 Partikelgrößenverteilung

Mit der Laserstreulichtanalyse kann die Entwicklung der Partikelgrößenverteilung im Verlauf eines Granulationsprozesses ermittelt werden. Dazu müssen die Stichproben des feuchten Schüttgutes sofort nach ihrer Entnahme aus dem Granulationsansatz mit möglichst geringer mechanischer Beanspruchung auf einer ebenen Fläche ausgebreitet und getrocknet werden, um die aktuelle Korngröße zu fixieren. Es kann gezeigt werden, dass das Granulatwachstum sehr schnell nach Beginn der Bindemittelzugabe einsetzt. Nach etwa 10 Minuten führt weiteres Sprühen nur noch zu geringem Größenzuwachs. Die Abnahme von D[v; 0,5] im Verlauf der Trocknung beweist einen geringfügigen Abrieb während dieser Phase[203,204]. Das erhaltene Produkt weist als Ergebnis einer Siebanalyse folgende Partikelgrößenverteilung auf:

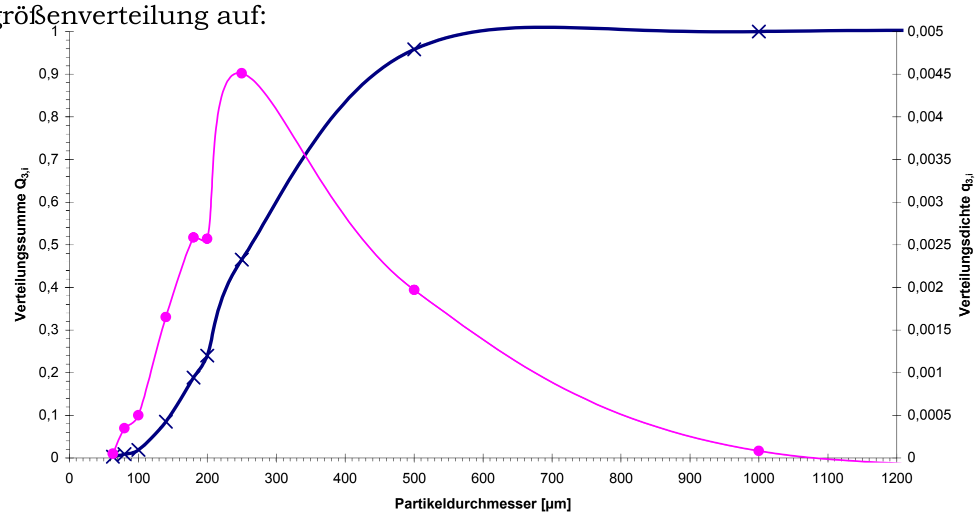


Abbildung 6-40 *Partikelgrößenverteilung des Standardgranulates*

D[v; 0,5] = 265 µm

6.6.2 Friabilität

Schon der visuelle Eindruck des Granulats nach dem Ende der 30 minütigen Belastung im Turbula-Mischer lässt nur geringen Abrieb erwarten. Lediglich an der Glaswand des Mischgefäßes ist ein geringer Belag an Feinstaub zu erkennen. Es werden folgende Messwerte erhalten:

Einwaage Standardgranulat.................................. : 105,18 g
Siebrückstand nach 8 min.................................... : 67,69 g

Einwaage Standardgranulat nach Beanspruchung . : 105,15 g
Siebrückstand nach 8 min.................................... : 65,34 g

Der Abrieb beträgt damit gemäß Gleichung 4-1:

$$Abrieb = \frac{67{,}69\,g - 65{,}34\,g}{67{,}69\,g} = 3{,}47\,\%$$

Als Ergebnis einer Dreifachbestimmung wird ein Mittelwert des Abriebs von 3,43 % erhalten. Das Standardgranulat wird daher als unempfindlich gegen Abrieb bewertet.

6.6.3 Rasterelektronenmikroskopie

Um eine mögliche Formänderung der Partikeln im Verlauf eines Granulationsprozesses zu untersuchen, werden REM-Aufnahmen von Proben gemacht, die zu verschiedenen Zeitpunkten eines Standardgranulationsprozesses erhalten worden waren: 10 und 20 Minuten nach Sprühbeginn, zu Sprühende sowie nach Ende der zehnminütigen Trocknungsphase werden Proben mit dem Probenzieher gewonnen, auf ein Uhrgläschen verteilt und sofort im Trockenschrank bei 60 °C getrocknet. Die folgende Aufnahme zeigt Partikeln nach der Hälfte der Granulationsphase in 100 facher Vergrößerung:

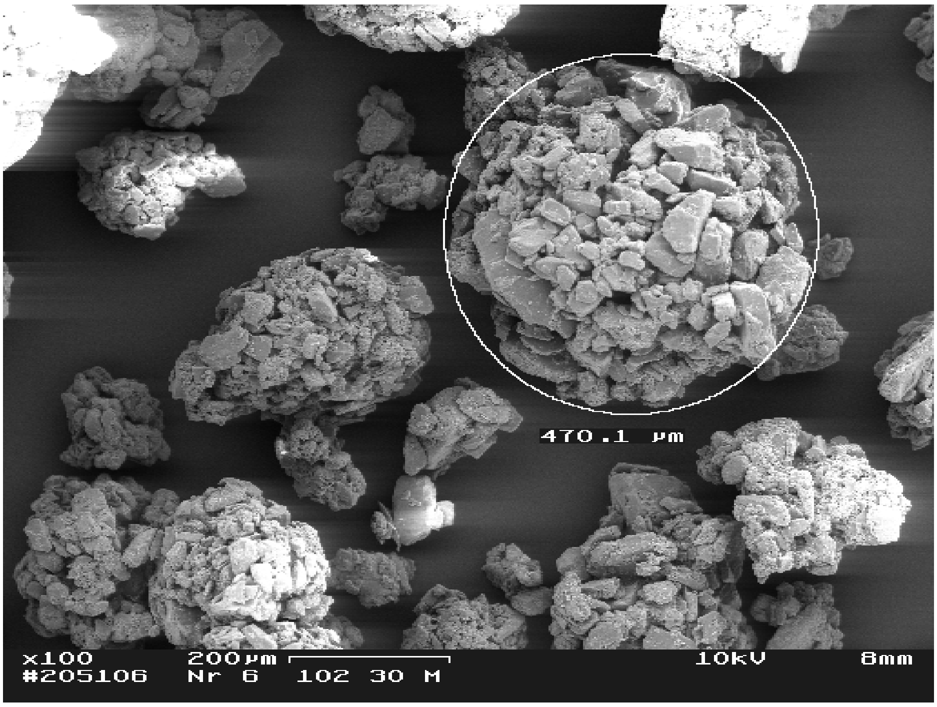


Abbildung 6-41 *REM-Aufnahme des Granulates mit 100 facher Vergrößerung*

Es ist deutlich zu erkennen, dass sich Agglomerate mit unterschiedlicher aber stets abgerundeter, elliptisch bis kugeliger Form gebildet haben. Der im GranuLac® enthaltene Feinanteil ist nicht mehr zu finden. Die folgende 500 fache Vergrößerung zeigt die Oberfläche eines solchen Granulatpartikels:

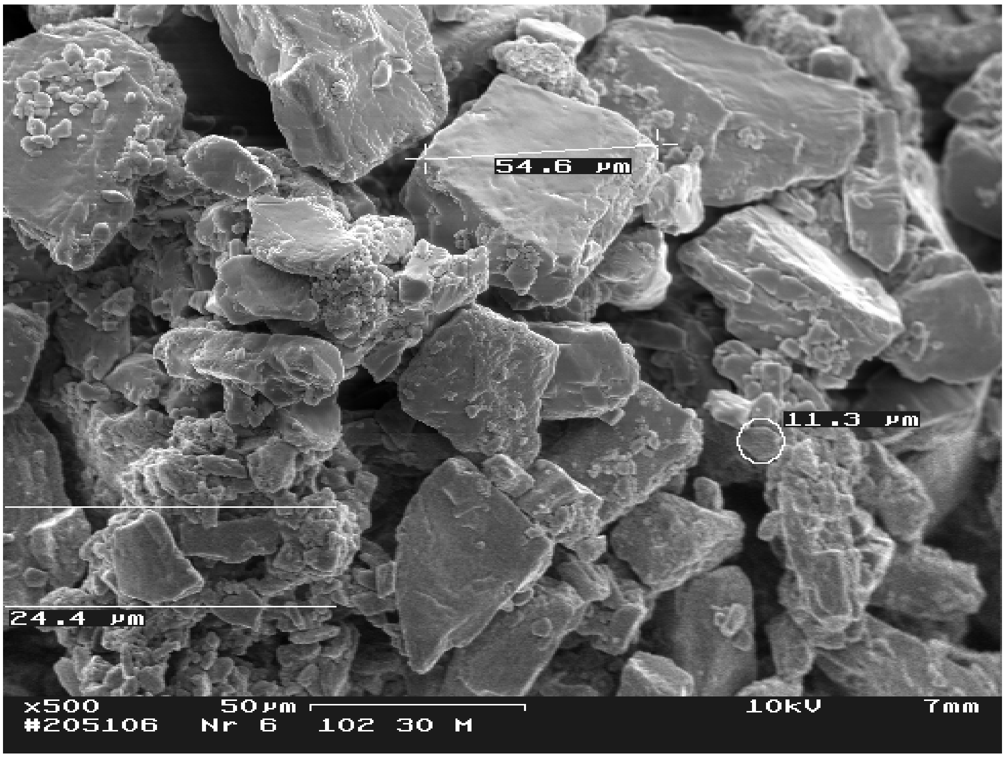


Abbildung 6-42 *REM-Aufnahme der Oberfläche eines Granulatpartikels in 500 facher Vergrößerung*

Die Primärpartikeln sind noch deutlich im Granulatkorn zu erkennen. Diese Aufnahme zeigt die zerklüftete, viele Poren beeinhaltende Struktur der Granulatpartikeln. Damit ist offensichtlich, dass das Bindemittel nicht etwa die Hohlräume zwischen den Primärpartikeln erfüllt, sondern vielmehr nur Kontaktstellen zwischen den verschiedenen Teilchen bildet.

Gegen Ende der Sprühphase kann es zu Sekundäragglomerationen kommen: Die Partikelngröße nimmt noch einmal deutlich zu. Die folgende Aufnahme zeigt ein solches Granulatteilchen in 100 facher Vergrößerung:

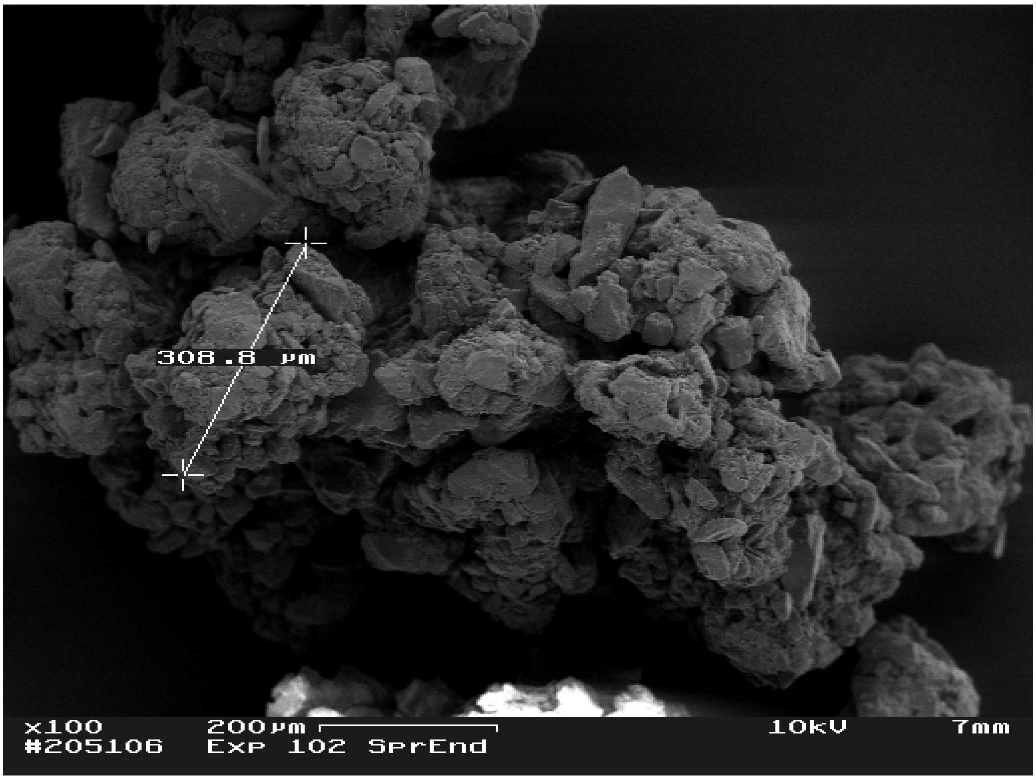


Abbildung 6-43 REM-Aufnahme von Sekundäragglomerationen in 100 facher Vergrößerung

Es ist deutlich zu erkennen, dass dieses Teilchen mit einem Durchmesser von ca. 1 mm aus mehreren Granulatpartikeln zusammengesetzt ist. Derartige durch Sekundäragglomeration hervorgegangene Partikeln werden während der Trocknungsphase durch die mechanische Belastung des Gutes zumeist wieder abgebaut. Die folgende Aufnahme zeigt das fertige Granulat zu Ende der Sprühphase in 20 facher Vergrößerung:

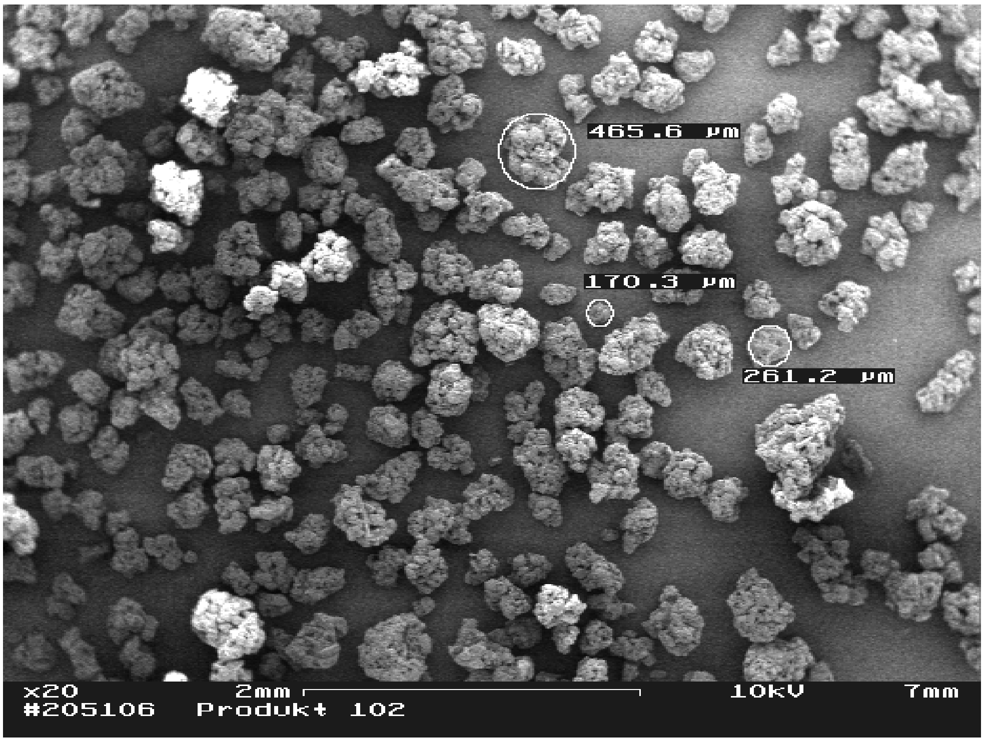


Abbildung 6-44 REM-Aufnahme des Produkts am Ende der Sprühphase in 20 facher Vergrößerung

Es ist gut zu erkennen, dass am Ende des Trocknungsprozesses relativ sphärische Partikeln übrigbleiben; es sind praktisch keine durch Sekundäragglomeration temporär gebildeten Partikeln mehr existent. Die Partikeln variieren in der Größe zwischen 150 und 500 µm.

Das in der Sprühflüssigkeit gelöste Bindemittel reichert sich während der Agglomerationsphase an der Partikeloberfläche in Form eines Films an. Aus diesem Grund ist es nur schwer möglich, Festkörperbrücken aus erhärtetem Bindemittel an der Granulatoberfläche sichtbar zu machen[49]. Erschwerend kommt hinzu, dass nach Überschreiten einer gewissen Vergrößerung der Elektronenstrahl deutlich sichtbare Veränderungen an der Probe bewirkt: Wenige Sekunden nach Einstellung der Vergrößerung wölbt sich die Oberfläche auf, das Umfeld bekommt Risse. Bei den vorliegenden Proben waren derartige Zerstörungen bei Vergrößerungen jenseits von 5000 zu beobachten. Die folgende Aufnahme zeigt derartige Veränderungen, die beim Fokussieren mit 10.000 facher Vergrößerung entstanden sind:

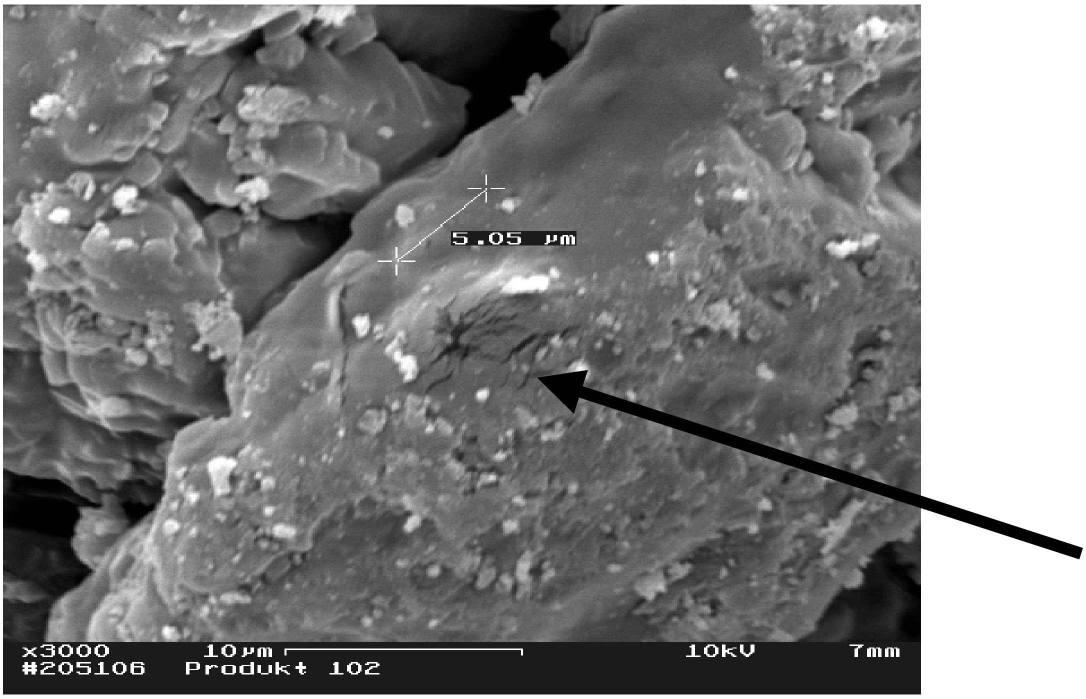


Abbildung 6-45 *REM-Aufnahme des Granulates in 10.000 facher Vergrößerung*

Dennoch ist es gelungen, Aufnahmen von Bindemittelbrücken zu machen:

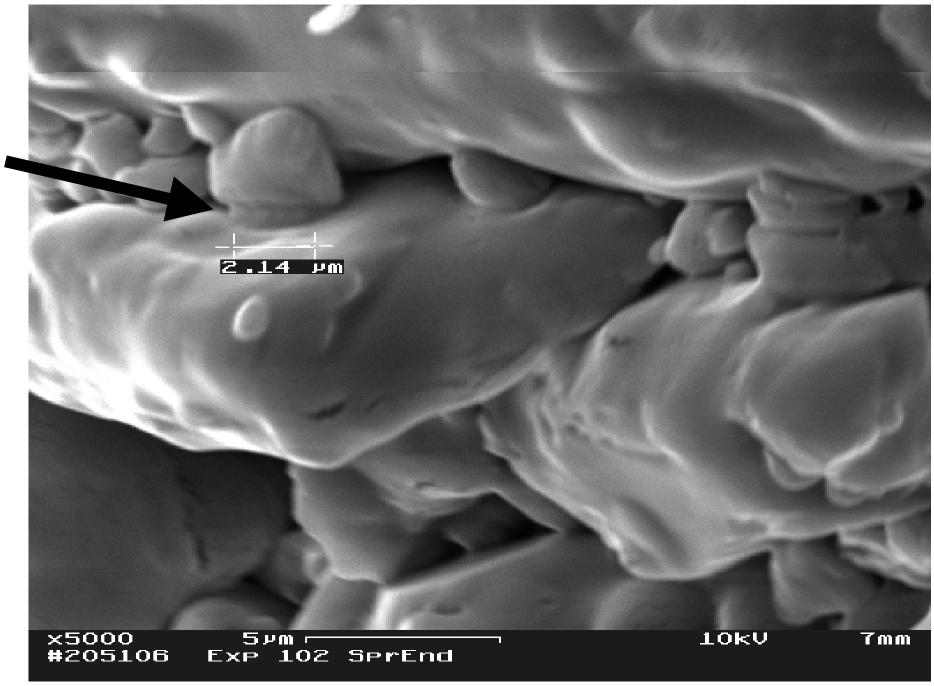


Abbildung 6-46 REM-Aufnahme einer Bindemittelbrücke in 5000 facher Vergrößerung

Da sich CrossPVP mit seiner schwammförmigen Struktur sehr deutlich von den kantigen GranuLac-Partikeln unterscheidet, ist es möglich, Primärpartikeln dieses Sprengmittels in Granulatpartikeln zu identifizieren. Die folgende Aufnahme zeigt Bindemittelbrücken zwischen CrossPVP und Granulac-Primärpartikeln in 3000 facher Vergrößerung:

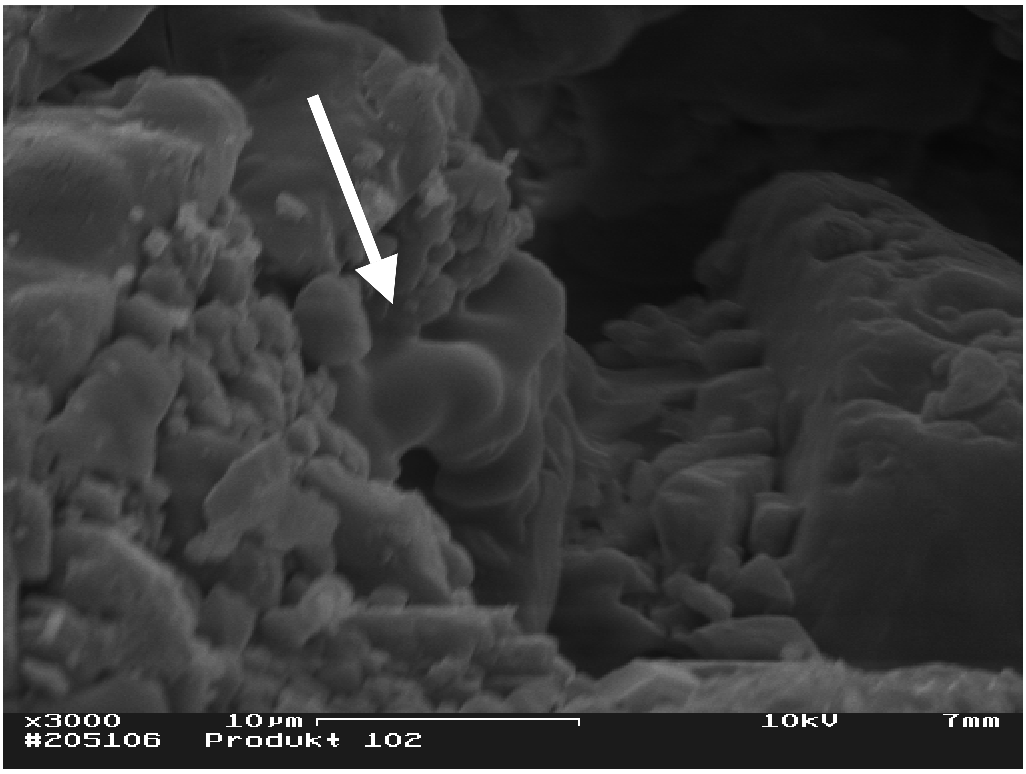


Abbildung 6-47 REM-Aufnahme einer Bindemittelbrück in 3000 facher Vergrößerung

6.7 ANSÄTZE ZUR SIMULATION DER WIRBELSCHICHT-GRANULIERUNG

Im Folgenden werden zunächst die für eine Simulation erforderlichen Berechnungen für die kritischen Parameter eines WSG-Prozesses durchgeführt.

6.7.1 Berechnung der Enthalpie feuchter Luft

Die Enthalpie H eines zusammengesetzten Systems entspricht der Summe der Enthalpien der das System aufbauenden Komponenten. Für feuchte Luft (ohne Wasserkondensatbildung) gilt folglich:

$$H_{ges} = H_{TL} + H_D \tag{6.48}$$

H_{ges} *Enthalpie feuchter Luft [kJ]*
H_{TL} *Enthalpie trockener Luft [kJ]*
H_D *Enthalpie von Wasserdampf [kJ]*

Da die Enthalpie stets als Produkt von Masse m und spezifischer Enthalpie h beschrieben werden kann, gilt:

$$H_{ges} = m_{TL} \cdot h_{TL} + m_W \cdot h_D \tag{6.49}$$

m_{TL} *Masse trockener Luft [kg]*
h_{TL} *Spezifische Enthalpie trockener Luft [kJ/kg]*
m_W *Masse Wasser [kg]*
h_D *Spezifische Enthalpie von Wasserdampf [kJ/kg]*

Die Division dieser Gleichung durch die Masse trockener Luft m_{TL} führt damit zur Berechnung der spezifischen Enthalpie feuchter Luft h_{ges}:

$$h_{ges} = h_{TL} + \chi \cdot h_D \tag{6.50}$$

h_{ges} *Spezifische Enthalpie feuchter Luft [kJ/kg]*

In Übereinstimmung mit dem HESS´schen Satz kann die Herstellung von Wasserdampf der Temperatur T gedanklich in zwei Phase geteilt werden: zuerst wird Wasser bei 0 °C verdampft und anschließend auf T aufgeheizt. Die spezifische Enthalpie von Wasserdampf entspricht somit der Summe:

$$h_D = h_V + h_W \tag{6.51}$$

h_V *Spezifische Verdampfungsenthalpie von Wasser 2491 kJ/kg*
h_W *Spezifische Enthalpie von Wasser [kJ/kg]*

Es gilt allgemein:

$$\Delta H = m \cdot c_p \cdot \Delta T \tag{6.52}$$

c_p *Spezifische Wärmekapazität bei konstantem Druck [kJ/(kg·°C)]*

Da man nur imstande ist, Enthalphieänderungen zu messen, können in Gemischen Enthalphienullpunkte beliebig definiert werden[205]. Als unterer Bezugspunkt wird willkürlich 0 °C gewählt und die Enthalpie trockener Luft sowie flüssigen Wassers gleich Null gesetzt.

$$\begin{aligned} &Für\,\vartheta = 0°C \quad gelte: \quad h_{TL} \equiv 0 \\ &\Rightarrow\ h_{TL} = c_{p,TL} \cdot \Delta T \\ &\Rightarrow\ h_{TL} = c_{p,TL} \cdot \vartheta \\ \\ &Für\,\vartheta = 0°C\, gelte: \ h_W \equiv 0 \\ &\Rightarrow\ h_W = c_{p,W} \cdot \vartheta \end{aligned} \tag{6.53}$$

$c_{p,TL}$ *Spezifische Wärmekapazität trockener Luft bei konstantem Druck [kJ/(kg·°C)]*
$c_{p,W}$ *Spezifische isobare Wärmekapazität des Wasserdampfes [kJ/(kg·°C)]*

Für die spezifische Enthalpie feuchter Luft h_{ges} gilt somit:

$$h_{ges} = c_{P,TL} \cdot \vartheta + \chi \cdot \left(h_V + c_{P,W} \cdot \vartheta\right) \tag{6.54}$$

Aus dem Einsetzen der konstanten Zahlenwerte[206] resultiert schließlich:

$$h_{ges} = 1{,}005 \frac{J}{g \cdot °C} \cdot \vartheta + \chi \cdot \left(2491 \frac{J}{g} + 1{,}93 \frac{J}{g \cdot °C} \cdot \vartheta \right) \tag{6.55}$$

Diese Gleichung verdeutlicht, dass die Enthalpie feuchter Luft mit steigender Temperatur und steigendem Feuchtegehalt zunimmt. Sie ist die Grundlage zur Erstellung des 1923 nach dem deutschen Physiker MOLLIER benannten Diagramms.

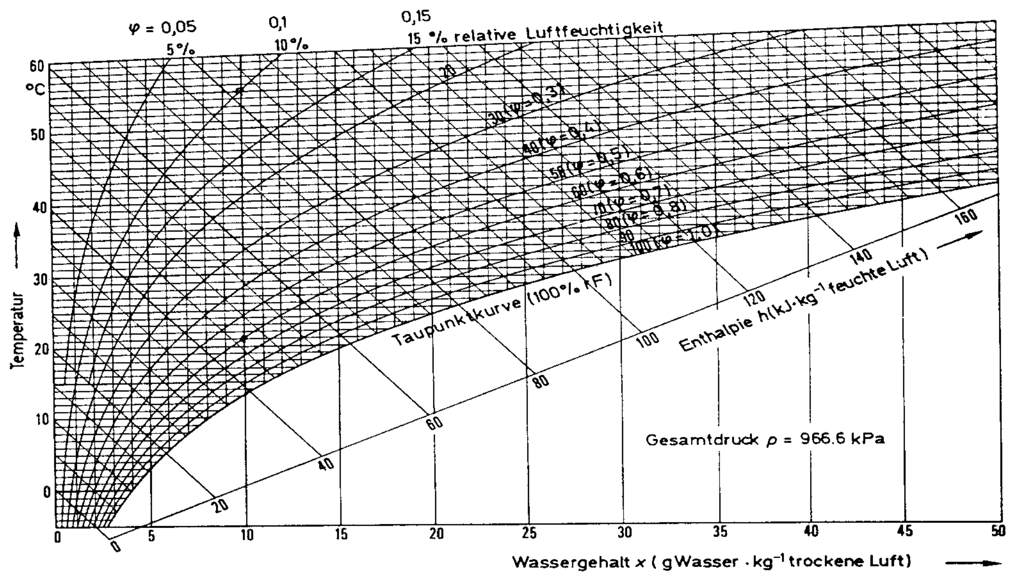


Abbildung 6-48 *Mollier-Diagramm*

6.7.2 Berechnung der kritischen Sprührate

Die Absicht der Berechnung besteht darin, für definierte Zuluftbedingungen den maximal erreichbaren Feuchtegrad der Abluft zu postulieren, um damit die Voraussetzungen für die Berechnung der kritischen Sprührate zu schaffen. Hierzu wird ein adiabatischer Trocknungsprozess angenommen: Die zum Verdampfen des eingesprühten Wassers erforderliche Energie soll allein von der aufgeheizten Zuluft herrühren. Bei Vorversuchen mit Einsprühen von Wasser in die leere Anlage hat sich gezeigt, dass die Temperatur des Wandmaterials unmittelbar nach Beginn des Sprühvorganges stark abnimmt. Die in der Behälterwand des GPCG sowie im Granulat selbst gespeicherte Wärmemenge ist im Vergleich zu der mit der aufgeheizten Zuluft zugeführten vernachlässigbar und bleibt daher für die nachfolgenden Rechnungen unberücksichtigt[19].

Für die Berechnung der kritischen Sprührate muss zunächst die aus der Verdampfung des eingesprühten Wassers zu erwartende Ablufttemperatur ermittelt werden. Die spezifische Enthalpie der aufgeheizten Zuluft h_{ges} lässt sich gemäß (6.54) berechnen. Unter der Annahme eines adiabatischen Prozesses ist h_{ges} ein konstanter Wert. Auflösen dieser Gleichung nach υ führt damit unmittelbar zu der gesuchten Ablufttemperatur:

$$\vartheta = \frac{h_{ges} - h_V \cdot \chi}{c_{P,TL} + c_{P,W} \cdot \chi} \tag{6.56}$$

Die kritische Sprührate ist genau dann erreicht, wenn die Abluft eine relative Feuchte von φ_{out} = 100 % aufweist. Durch Einsetzen von (2.27)

$$\chi = 0{,}622 \cdot \frac{\varphi \cdot p_D}{p - \varphi \cdot p_D} \tag{2.27}$$

in (6.56) folgt mit $\varphi = 1$ somit:

$$\vartheta = \frac{h_{ges} - h_V \cdot 0{,}622 \cdot \dfrac{p_D}{p - p_D}}{c_{P,TL} + c_{P,W} \cdot 0{,}622 \cdot \dfrac{p_D}{p - p_D}} \tag{6.57}$$

Der Sättigungsdampfdruck von Wasser p_D ist ebenfalls temperaturabhängig und wird mit (6.5) berechnet. Es gilt folglich:

$$0 = \frac{h_{ges} - h_V \cdot 0{,}622 \cdot \dfrac{610{,}78 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}}}{p - 610{,}78 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}}}}{c_{P,TL} + c_{P,W} \cdot 0{,}622 \cdot \dfrac{610{,}78 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}}}{p - 610{,}78 \cdot e^{\frac{17{,}08085 \cdot \vartheta}{234{,}175 + \vartheta}}}} - \vartheta \tag{6.58}$$

Da ein Auflösen dieser Gleichung nach ϑ nicht möglich ist, wird die Abluft-temperatur nummerisch bestimmt. Beginnend bei 0 °C wird der Wert für ϑ in 0,01 °C Schritten erhöht, bis die Differenz in Gleichung 6.58 gerade größer als Null wird*. Mit dem so erhaltenen Wert der Ablufttemperatur wird jetzt der Feuchtegehalt der Abluft gemäß (2.28) ermittelt:

$$\chi_{out} = 622 \cdot \frac{p_D(\vartheta)}{p - p_D(\vartheta)} \qquad (6.59)$$

Diese Berechnung kann graphisch anhand des Mollier-Diagramms durch Verschiebung parallel zur Adiabate nachvollzogen werden.

Für die Massenströme des Wassers gilt analog zu den Berechnungen in der Massenbilanzierung mit dem Übergang in die Einheit g/min folgende Zahlenwertgleichung:

$$\dot{m}_{w,in} = \frac{1000}{60} \cdot \frac{\rho_{in} \cdot \dot{V}_{in}}{1 + \frac{1000}{\chi_{in}}} \qquad (6.60)$$

$\dot{m}_{w,in}$ *Massenstrom Wassereintrag durch die Frischluft [g/min]*

Die Masse an trockener Luft, die mit der Pressluft eingetragen wird, ist so gering, dass sie für diese Berechnungen vernachlässigbar ist. Es gilt daher:

$$\dot{m}_{TL} = \dot{m}_{ges,in} - \dot{m}_{w,in} \qquad (6.61)$$

$\dot{m}_{Tl}$ *Massenstrom trockener Luft [g/min]*

$$\dot{m}_{TL} = \frac{1000}{60} \cdot \rho_{in} \cdot \dot{V}_{in} - \dot{m}_{w,in} \qquad (6.62)$$

Mit dem so bestimmten Massenstrom an trockener Luft wird unmittelbar der Massenstrom an Wasser in der Abluft zugängig:

$$\dot{m}_{w,out} = \chi_{out} \cdot \dot{m}_{TL} \qquad (6.63)$$

Als letzten Schritt der Berechnung wird die kritische Sprührate als Differenz der beiden Wasser-Massenströme ermittelt:

$$\dot{m}_{krit} = \dot{m}_{w,out} - \dot{m}_{w,in} \qquad (6.64)$$

* *Vergleiche Programmlisting im Anhang*

6.7.3 Anwendung des Parameters „*kritische Sprührate*“ in der Praxis

Wie eingangs dargestellt wurde, besteht die weitere Zielsetzung der Arbeit darin, basierend auf der Massenbilanzierung Arbeitsbereiche für Standardgranulate zu charakterisieren sowie darauf aufbauend WSG-Prozesse steuern zu können.

Im Folgenden wird am Beispiel der Standardrezeptur aufgezeigt, wie Arbeitsbereiche für die Durchführung einer Granulierung ermittelt werden können. Das Versuchsdesign sieht dazu vor, ausgehend von der empirisch ermittelten Standardrezeptur unter Konstanthaltung aller übrigen Versuchsparameter die Sprührate auf vier Niveaus zu variieren. Die Masse an zugesetzter Bindemittellösung ist in allen Experimenten konstant. Das bedeutet, dass z.B. bei einer erhöhten Sprührate die Sprühphase entsprechend kürzer ist. Als Bewertungskriterium fungiert hier die kritische Sprührate.

Bei der Standardrezeptur werden 520 g Bindemittellösung mit einer Sprührate von 25 g/min zugeführt. Die kritische Sprührate beträgt während dieses Versuchs 15,2 g/min. Es werden folgende fünf Versuche durchgeführt:

Tabelle 6-3 *Versuchsdesign*

Experiment Nr.	Verhältnis Sprührate zu kritischer Sprührate	Bemerkung
0193	1,7	Standardrezeptur
0194	0,8	
0195	2,3	Vorzeitiger Versuchsabbruch, da Festbettbildung
0196	2,0	
0197	1,7	Reproduzierbarkeit

Die Ergebnisse der Massenbilanzierungsrechnung aller Versuche werden durch lineare Transformationen so in einem Diagramm zusammengestellt, dass der Anstieg die Funktionen $m_{\text{Wasser im Ansatz, i}}(t)$ zu Beginn der Sprühphase sämtlich im Koordinatenursprung liegen.

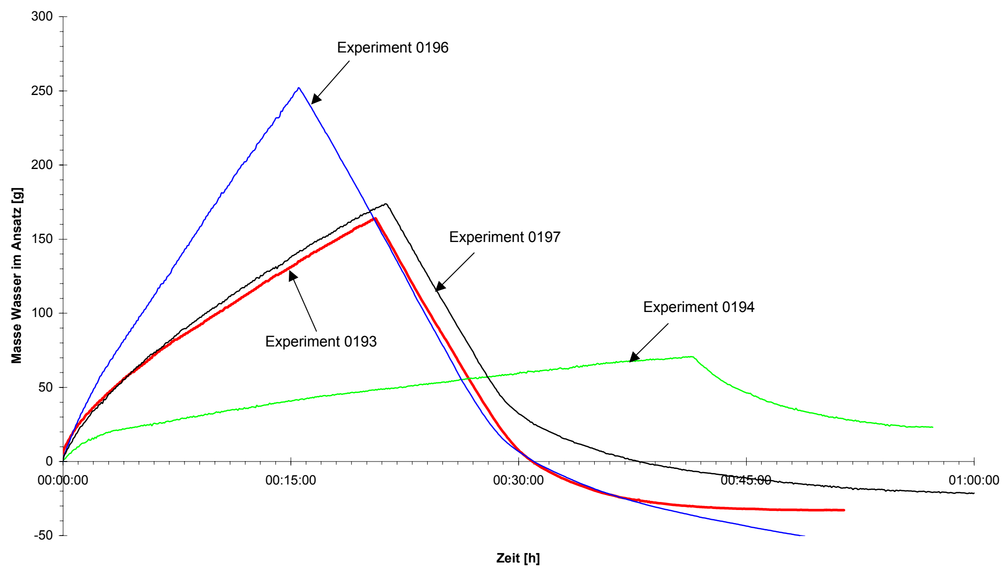


Abbildung 6-49 *Vergleich der Ergebnisse der Massenbilanzierungsrechnung*

Diese Abbildung verdeutlicht, dass das Einsprühen einer konstanten Masse an Bindemittellösung mit verschiedenen Sprühraten zu unterschiedlichen temporären Wassergehalten im Ansatzgefäß führt. Um zu ermitteln, welchen Einfluß dies auf die Beschaffenheit der erhaltenen Granulate hat, wurden von den vier Produkten Siebananlysen durchgeführt.

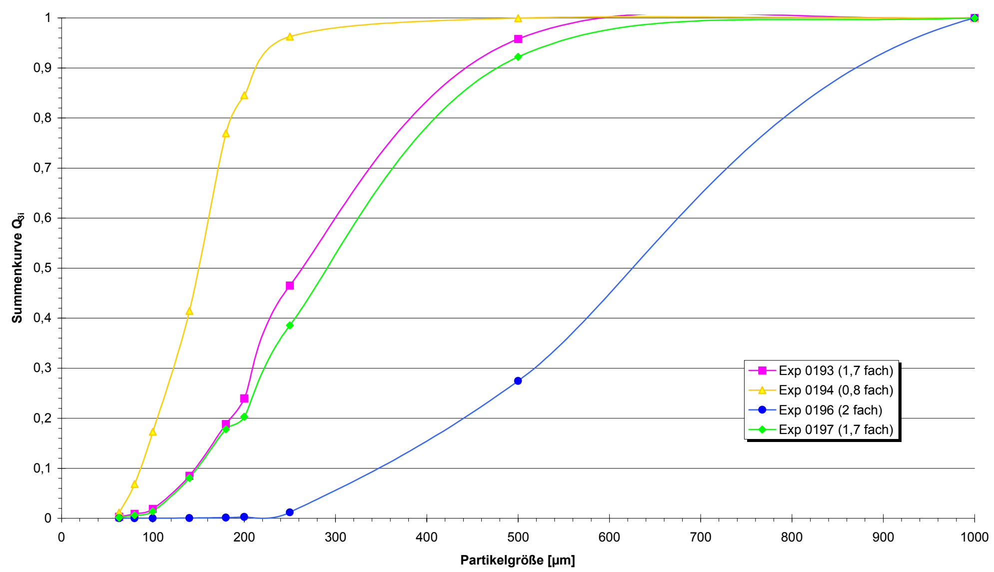


Abbildung 6-50 *Einfluß der Granulationsbedingungen auf die Partikelgrößenverteilung*

$D[v;\ 0{,}5]_{\text{Experiment 0193}}$ = 265 µm $D[v;\ 0{,}5]_{\text{Experiment 0194}}$ = 150 µm

$D[v;\ 0{,}5]_{\text{Experiment 0197}}$ = 290 µm $D[v;\ 0{,}5]_{\text{Experiment 0196}}$ = 620 µm

Die Resultate der Siebanalysen verdeutlichen, dass höhere Feuchtegehalte des zu granulierenden Gutes während der Sprühphase die Partikelgrößenverteilung des Produktes zu größeren Werten hin verschiebt.

Aus der Festbettbildung bei Anwendung des 2,7 fachen der kritischen Sprührate wird der kritische Wassergehalt für die Standardgranulationsmethode berechnet: Der Zusammenbruch des Wirbelbettes trat bei einer Wassermasse von 260 g auf 947 g trockenes Schüttgut auf. Der kritische Wassergehalt beträgt demnach w_{lim} = 27,5 %.

Abschließend bleibt festzuhalten, dass diese Ergebnisse die Anwendbarkeit der Massenbilanzierungsrechnung im Allgemeinen sowie die des Parameters „kritische Sprührate“ im besonderen belegen.

7 DISKUSSION UND AUSBLICK

Mit dieser Arbeit ist gezeigt worden, dass bei adäquater Instrumentierung einer WSG-Anlage eine Massenbilanzierung eines Wirbelschichtgranulationsprozesses durchgeführt werden kann. Der auf diese Art berechnete Verlauf des Wassergehalts im Granulationsgefäß während eines WSG-Prozesses entspricht exakt dem in der Literatur postulierten[46]. Mit der vorliegenden Instrumentierung des GPCG ist eine vollständige Beschreibung eines WSG-Prozesses (mit Ausnahme der Wärmeabstrahlung der Anlage) möglich. Im Verlauf der Arbeiten wurde deutlich, wie aufwendig insbesondere die Kalibrierung von Feuchte- und Volumenstrommessungen sind. Es wurde offensichtlich, dass die Sensorik erst nach einer thermischen Äquilibrierung der gesamten Anlage stabile Basislinien erreicht, die Voraussetzung für die Berechnung einer Massenbilanzierung sind. Nicht unterschätzt werden dürfen Probleme mit dem dynamischen Verhalten der Messumformer. Die Abweichungen der Trocknungsverlaufskurve zu Beginn der Sprühphase gegenüber dem Ende der Trocknungsphase werden hauptsächlich auf derartige Messungenauigkeiten zurückgeführt. Verbesserungsmöglichkeiten werden daher bezüglich der Ansprechzeit und der Richtigkeit der Feuchtesensoren gesehen.

Am Ende dieser Arbeit soll in einem Ausblick aufgezeigt werden, welches Entwicklungspotenzial in der Massenbilanzierung von WSG-Anlagen steckt.

Höchste Priorität in der Verbesserung der Instrumentierung sollte dem *Ansprechverhalten der Feuchtesensoren* zugewiesen werden. Die dynamische Korrekur der Messkurven ist dazu ein probates Instrument, zweckmäßiger hingegen ist die Verwendung von Messumformern mit verbessertem Zeitverhalten.

Bei der gegenwärtigen Instrumentierung arbeitet der Abluftfeuchtesensor häufig dicht an der oberen Grenze seines Arbeitsbereichs. Durch *aktives Aufheizen der Abluft* könnte die relative Feuchte soweit gesenkt werden, dass die Sensorik im optimalen Bereich arbeitet. Alternativ wäre auch eine Messung hinter dem Sauggebläse bzw. unmittelbar vor dem Abluftgräting möglich, da hier die Temperatur deutlich über der an der Abluftmessstelle liegt.

Durch ein *aktives Aufheizen des akustischen Feuchtesensors* kann sichergestellt werden, dass Mess- und Referenzluftstrom von Beginn der Messung an die gleiche Temperatur haben. Der Temperatureffekt wird damit eliminiert.

Bei Verwendung einer größeren Messzelle sollte es möglich sein, konstante Strömungsverhältnisse am akustischen Feuchtesensor zu erhalten, so dass der Einfluß des Volumenstroms auf das Messergebnis ausgeschlossen wird. Dabei ist zu gewährleisten, dass das Ansprechverhalten des Messsystems nicht übermäßig verschlechtert wird.

Zwar ermöglicht die Massenbilanzierung das Arbeiten mit variablen Frischluftfeuchtegehalten, für Überprüfungen der Reproduzierbarkeit des gesamten Messsystems wäre hingegen eine *Konditionierung der Frischluft* sehr hilfreich.

Bei Verwendung alternativer Rezepturen sollten insbesondere *Massenbilanzierungen von Krustengranulationen* durchgeführt werden, um zu überprüfen, ob während der Granulationsphase mit einem konstanten Wassergehalt des Schüttgutes gearbeitet werden kann.

Bei der Berechnung der kritischen Sprührate ist die in der Anlage gespeicherte Wärme vernachlässigt worden. Eine Erhöhung der Richtigkeit dieser Berechnung könnte bei Aufstellung einer *Wärmebilanz der gesamten WSG-Anlage* erzielt werden. Hierzu wären eine Vielzahl von Temperaturmessungen an der Außenseite des GPCG erforderlich.

Die Übertragung der Massenbilanzierung auf *alternative WSG-Verfahren* wie das Rotor-Verfahren sollte problemlos möglich sein, bedarf jedoch der experimentellen Verifizierung.

Voraussetzung für die industrielle Anwendung der Massenbilanzierung ist ein erfolgreiches *Scale-up der Instrumentierung*. Allein dies würde bereits die Validierung von WSG-Prozessen deutlich erleichtern.

Es sollte möglich sein, mit der in dieser Arbeit entwickelten Massenbilanzierung *Steuerungen beliebiger WSG-Prozesse* für Standardrezepturen durchzuführen.

8 ZUSAMMENFASSUNG

In der vorliegenden Arbeit wird die Massenbilanzierung einer Wirbelschichtgranulierung implementiert. Durch die umfangreiche Instrumentierung eines Laborgerätes zum Wirbelschichtgranulieren im Top-Spray-Verfahren ist es möglich, die relative Luftfeuchte, die Temperatur und den Absolutdruck der Frischluft sowie der Abluft und ferner den Luftvolumenstrom zu messen. Die Berechnung der Dichten der feuchten Luft ermöglicht den Übergang zu Massenströmen von Luft und von Wasser. Aus der Differenz von in die Anlage eingebrachtem und herausgefördertem Wasser wird auf die aktuelle Masse an Wasser im Granulationsansatz geschlossen. Voraussetzung für eine derartige Massenbilanzierung ist dabei eine sehr präzise Bestimmung sämtlicher relevanter Parameter.

Für die Messung der relativen Luftfeuchten mit kapazitiven Feuchtesensoren ist ein Kalibrierverfahren entwickelt worden, bei welchem gesättigte Salzlösungen bei verschiedenen Temperaturen Luftatmosphären definierter relativer Feuchtigkeit aufweisen. Aus den gemessenen Daten von Temperatur und relativer Luftfeuchtigkeit wird dabei mittels Response-surface-Technik eine dreidimensionale Korrekturfunktion ermittelt.

Das Ansprechverhalten der Feuchtesensoren ist ein kritischer Parameter für die Massenbilanzierung. Das für Feuchtesensoren obligatorische Sinterfilter führt zu zeitlichen Verzögerungen der Messung. Da innerhalb dieses Schutzkörpers aufgrund des Temperaturunterschiedes zum Messmedium ein eigenes Mikroklima herrscht, kann die relative Feuchte der strömenden Luft nur bei Einsatz eines zusätzlichen, externen Temperaturfühlers berechnet werden. Eine Verbesserung der dynamischen Feuchtemessungen stellen akustische Feuchtesensoren in Aussicht.

Die Messung des Volumenstroms erfolgt durch ein ungedämpftes Flügelradanemometer. Zur Kalibrierung dieses Sensors werden mit einem Hitzedrahtanemometer Strömungsprofile in einer Einlaufstrecke bei verschiedenen Volumenstrombedingungen aufgenommen. Aus der Integration der Strömungsgeschwindigkeit über den Rohrquerschnitt wird der aktuelle Volumenstrom ermittelt. In der gesamten Anlage herrschen stets turbulente Strömungsverhältnisse.

Die Messung des statischen Druckes an den Stellen der Feuchtemessungen ist Voraussetzung für die korrekte Berechnung des Feuchtegehalts sowie der Dichte der feuchten Luft.

Voraussetzung für die Massenbilanzierung ist, dass im Bereich der Feuchtemessstellen sämtliches Wasser gasförmig vorliegt, da Kondensat nicht von den Feuchtesensoren erfasst wird. Durch Messung der Rohrwandtemperatur und Berechnung der Taupunkttemperatur der Abluft kann eine Kondensation von Wasser an der Stelle der Abluftfeuchtemessung ausgeschlossen werden.

Durch Anwendung der Massenbilanzierungsrechnung kann gezeigt werden, dass der Wassergehalt im Granulationsgefäß im Verlauf der Sprühphase kontinuierlich ansteigt, um während der Trocknungsphase in drei Trocknungsabschnitten wieder auf den Ausgangswert zurückzugehen.

Für den Fall der Standardrezeptur folgt aus der Erstellung der Wasserbilanz, dass im Verlauf eines Granulationsprozesses mit der Frischluft mehr als doppelt so viel Wasser in die Anlage eingetragen wird, wie aus dem Einsprühen der Bindemittellösung resultiert.

Die Berechnung der Enthalpie der feuchten Zuluft zusammen mit den Annahmen eines adiabatischen Verdampfungsprozesses und einer Sättigung der Abluft erlauben die Bestimmung einer kritische Sprührate, bei welcher sämtliches durch die Sprühflüssigkeit eingetragenes Wasser durch die Abluft herausgefördert wird. Die Richtigkeit dieser Berechnung kann durch Einsprühen von Wasser in eine leere Anlage verifiziert werden.

Für die verwendete Standardrezeptur wird aufgezeigt, dass eine zufriedenstellende Aufbauagglomeration bei einer Sprührate, die dem 1,7 fachen der kritischen Sprührate entspricht, erzielt wird. Ab dem 2,3 fachen der kritischen Sprührate kommt es hingegen zur Festbettbildung.

Die Zugabe einer konstanten Bindemittellösungsmenge mit unterschiedlicher Sprühkinetik führt zu unterschiedlichen Granulaten.

Die Sprühtropfengröße wird mit Hilfe der Laserstreulichtanalyse ermittelt. Durch eine dreidimensionale Response-Surface wird der mittlere Sprühtropfendurchmesser bei gegebener Sprührate sowie Sprühluftdruck berechnet.

Die Partikelgrößenbestimmung während des Granulationsprozesses wird durch eine Freifalleinrichtung in einen Laserstreulichtanalysator erzielt.

Mit dieser Arbeit werden die Voraussetzungen für die umfassende Steuerung von Wirbelschichtgranulationsanlagen sowie der darin stattfindenden Granulationsprozesse gelegt.

9 Summary

Besides the high shear granulator the fluidized bed granulator is the most important type of wet granulators used in pharmaceutical industry today. To ensure a constant product quality it is necessary to validate the whole wet granulation process. Given that fluidized bed granulators use air from the environment the moisture content of the fresh air influences the granulation process. As conditioning of the fresh air at a constant moisture content is the exception, many pharmaceutical manufacturers have immense problems concerning the validation of this kind of process. These days there are several moisture measurement systems for wet granulators available. However, no measurement technique is universally suitable for all substances. All of these systems require expensive calibrations.

The fluid bed granulator system is subdue to the water mass balance equation: The mass of water inside the granulator at each point of time can be calculated as the sum of water contained inside the primary particles at the beginnig plus the mass of water transferred into the granulator with the fresh air and the compressed air plus the contingent from the spray liquid minus the mass of water at the outflow.

The goal of this thesis is to prove the following hypothesis: It is technically possible to accurately calculate the mass of water in the fluid bed granulator system based on the measured values in the water mass balance equation. Thus evaluating the entire process of the granulation cycle. In addition, the agglomeration tendencies of primary particles depending on the moisture content were to be characterized. Finally the prerequisites for control systems and simulations of fluidized bed granulation processes needed to be established.

The granulation experiments are performed using a laboratory-scale Glatt Powder Coater Granulator (GPCG 1.1, Glatt GmbH, Binzen, Germany). The machine operates with the top-spray methode. The dimension of the granulator allows the handling of product batches up to a volume of 5 litres. As a result of substantial modification the machine contains an extensive instrumentation. Among other things the relative humidity, the temperature and the absolute pressure of the fresh as well as of the outlet air and moreover the volume flow are measured. The data collection is accomplished using a LabVIEW® software (National Instrumens Corporation, Austin, Texas, USA) at collection intervals of 5 seconds. Subsequently the data is transferred to a Microsoft® EXCEL worksheet for evaluation.

The granule formulation consists of α-lactose-monohydrate (GranuLac® 200, Meggle GmbH, Wasserburg, Germany) and cross-linked polyvinylpyrrolidone (Polyplasdone® XL, ISP Technologies Inc., Wayne, US) as tablet disintegrant. A solution of polyvinylpyrrolidone (Kollidon® 90 F, BASF AG, Ludwigshafen, Germany) in purified water is used for the granulation of the material.

The measurement of the relative humidity of the air flow is realized by capacitive humidity sensors (Hygromess Transmitter, Hygrocontrol GmbH, Hanau, Germany). At a given temperature an excess of a water soluble salt in contact with its saturated solution and contained within an enclosed space produce a constant relative humidity, which is used for the calibration of the sensing elements. Based on the measured data of temperature and relative humidity a three-dimensional function for the calibration factor is calculated via response-surface-technique.

The response time of the humidity sensors is a crucial parameter for the mass balance. The principle of measurement of the humidity sensors used is the modification of the capacity of a condenser. Dependend on the relative humidity of the surrounding, water diffuses into the sensing element and causes a change of the dielectric constant. The time required for the equilibration of this process leads to a time response of the sensor. The head of the humidity sensor is covered by a dust filter consisting of sintered metal. As the water has to pass the filter material, this causes a further delay of the measuring system. If the relative humidity of the medium jumps from 0 % up to 90 % the sensor displays the 45 % level after 2,5 minutes (half-life periode).

The temperature inside the dust filter differs from that of the surrounding. On this account there is a special climate at the sensing element. Nevertheless the moisture content of the humid air inside and outside the dust filter is identical. For the determination of the relative humidity of the flowing air an additional temperature sensor at this position is essential.

Acoustic humidity sensors use airborne sound properties as primary sensing effect. This type of measurement system features a very short response time. An acoustic humidity sensor (prototype, HTW, University of applied sciences, Dresden, Germany) is used for the dynamic humidity measurements of the outlet air. Comparative measurements demonstrate the advantages over capacitive humidity sensors with regard to the response characteristics.

The volume flow of the humid air is one of the most important parameters of the mass balance. For this reason it is important to calibrate the volume flow sensor as precisely as possible. The granulator is instrumented with a propeller-type flowrate meter (ZS25GA, Höntzsch GmbH, Waiblingen, Germany). In order to determine the volume flow most accurately, it is obligatory to measure the air flow velocity profile inside the tube under several constant volume flow conditions. The technical investigation is carried out with a hot-wire anemometer. The integration of the mathematical function describing the air velocity profiles results in volume flow values that are used for the calibration of the propeller-type flowrate meter. Turbulent flow is observed throughout the tubes.

The mass balance requires a conversion from the measured volume flow of humid air into a mass flow. As a result the density of the humid air at the positions of the fresh air moisture sensor and of the outlet air moisture sensor has to be calculated as precisely as possible.

As the granulator works with a suction fan, there is low pressure inside the system. This air pressure is dependent on several parameters like volume flow rate, powder-loading, filter obstruction etc. As the air pressure determines the density and relative humidity of the air, it is essential to measure its value at the position of the humidity sensors.

The humidity sensor is only able to measure at one position. Consequently it is a prerequisite for the calculation of a mass balance that the moisture content is constant in the whole cross-section of the tube. The experimental verification of this assumption however shows that there is a temperature decrease from the middle to the wall due to thermal radiation of the metallic tube. As a consequence the relative humidity increases in the same direction. However the moisture content values are constant over the cross-section. The temperature of the moisture sensor was always higher than the saturation temperature. Therefore, water condensation at the sensing element can be excluded.

The results of the mass balance calculation show that the mass of water inside the granulation vessel increases continuously during the spraying phase. The drying phase can be divided into three stages with different drying rates. In the final stages the water content of the bulk product reaches the initial value.

In case of the standard granulation methode the mass balance calculation clearly shows that the mass of water introduced by the fresh air exceeds that from the spray liquid more than twice.

The calculation of the enthalpy of the humid fresh air and the assumption of an adiabatic evaporation as well as a relative humidity of the outlet air of 100 % allows the determination of a critical spray rate. If water is sprayed into the empty granulator with this liquid feed rate, the complete amout of water is carried along by the outlet air.

In case of the standard granulation methode a satisfying agglomeration can be realised by use of a liquid feed rate that is 170 % of the critical spray rate. If the spray rate exceeds 230 % of the critical spray rate, the agglomeration tendencies of the bulk material jump up enormously. As a result it is not possible to fluidize the formulation any longer.

Using different spray kinetics to apply a constant mass of binder liquid results in diverse granulates.

The size of the spray drops is measured using laser diffraction (ParticleSizer ® 2600, Malvern, Herrenberg, Germany). The application of a three-dimensional response surface makes it possible to calculate the mean spray drop diameter dependent on spray rate and atomising air pressure.

As the sampling during the granulation process provides only a very small volume of sample material, a modified laser diffractometry methode has been developed. To overcome problems with attrition of the granules by use of the conventional sample application the bulk material is positioned on a chute. By means of mechanical induced vibrations the granules trickle from the chute and fall through the laser beam without any attrition effects.

The results presented in this thesis provide the prerequisites for a comprehensive control system for fluidized bed granulators as well as the according granulation processes.

10 ANHANG

ERGEBNISSE DER STRÖMUNGSGESCHWINDIGKEITS-MESSUNGEN

Tabelle 10-1

15 % Öffnung der Abluftklappe *19 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige*		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,01	1,482	0,287
0,03	1,475	0,263
0,1	1,461	0,218
0,2	1,474	0,260
0,3	1,476	0,267
0,4	1,493	0,328
0,5	1,51	0,398
0,6	1,515	0,420
0,7	1,528	0,480
0,8	1,532	0,500
0,9	1,535	0,515
1	1,546	0,573
1,1	1,555	0,623
1,2	1,554	0,617
1,3	1,55	0,595
1,4	1,559	0,646
1,5	1,564	0,675
1,6	1,568	0,700
1,7	1,569	0,706
1,8	1,574	0,737
1,9	1,579	0,769
2	1,578	0,763
2,2	1,581	0,782
2,4	1,587	0,822
2,6	1,593	0,864
2,8	1,596	0,885
3	1,594	0,871
3,2	1,601	0,921
3,4	1,603	0,935
3,6	1,602	0,928
3,8	1,604	0,943
4	1,607	0,965
4,2	1,609	0,980
4,4	1,607	0,965
4,6	1,613	1,011
4,8	1,615	1,026
5	1,618	1,050
5,2	1,617	1,042
5,4	1,614	1,019
5,6	1,617	1,042
5,8	1,616	1,034
6	1,618	1,050
6,2	1,612	1,003
6,4	1,618	1,050
6,6	1,624	1,098
6,8	1,626	1,114
7	1,623	1,090
7,5	1,621	1,074
8	1,627	1,123
8,5	1,627	1,123
9	1,622	1,082
9,5	1,625	1,106
10	1,624	1,098

12,5	1,626	1,114
15	1,628	1,131
17,5	1,633	1,173
20	1,638	1,216
22,5	1,637	1,207
25	1,64	1,233
27,5	1,639	1,224
30	1,64	1,233
32,5	1,639	1,224
35	1,643	1,260
40	1,643	1,260
45	1,638	1,216
50	1,634	1,181
55	1,627	1,123

Tabelle 10-2

23 % Öffnung der Abluftklappe 50 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,01	1,56	0,652
0,03	1,58	0,776
0,1	1,625	1,106
0,2	1,651	1,332
0,3	1,675	1,565
0,4	1,69	1,723
0,5	1,695	1,777
0,6	1,713	1,984
0,7	1,718	2,044
0,8	1,72	2,068
0,9	1,725	2,130
1	1,735	2,257
1,1	1,74	2,322
1,2	1,742	2,348
1,3	1,75	2,456
1,4	1,749	2,442
1,5	1,75	2,456
1,6	1,753	2,497
1,7	1,752	2,484
1,8	1,758	2,567
1,9	1,762	2,624
2	1,765	2,667
2,4	1,768	2,710
3	1,771	2,754
3,4	1,775	2,813
4	1,78	2,889
4,4	1,782	2,919
4,6	1,783	2,934
4,8	1,785	2,965
5	1,787	2,996
6	1,79	3,043
7	1,795	3,122
8	1,8	3,203
9	1,805	3,285
9,5	1,804	3,268
10	1,807	3,318
12,5	1,813	3,419
15	1,815	3,453
17,5	1,818	3,504
20	1,822	3,574
22,5	1,825	3,627
25	1,827	3,662
27,5	1,828	3,680
30	1,83	3,715
32,5	1,831	3,733
35	1,831	3,733
40	1,829	3,698
45	1,827	3,662
50	1,82	3,539
55	1,81	3,368
60	1,79	3,043
65	1,75	2,456

Tabelle 10-3

28 % Öffnung der Abluftklappe *71 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige*		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,1	1,692	1,744
0,2	1,731	2,205
0,3	1,76	2,595
0,4	1,771	2,754
0,5	1,789	3,027
0,6	1,792	3,075
0,7	1,809	3,351
0,8	1,81	3,368
0,9	1,823	3,591
1	1,825	3,627
1,1	1,823	3,591
1,2	1,829	3,698
1,3	1,828	3,680
1,4	1,83	3,715
1,5	1,832	3,751
1,6	1,835	3,806
1,7	1,838	3,861
1,8	1,839	3,879
1,9	1,842	3,935
2	1,842	3,935
2,2	1,8425	3,944
2,4	1,8455	4,000
2,6	1,848	4,048
2,8	1,853	4,143
3	1,855	4,182
3,2	1,852	4,124
3,4	1,855	4,182
3,6	1,857	4,221
3,8	1,858	4,240
4	1,859	4,260
4,5	1,865	4,379
5	1,868	4,439
5,5	1,873	4,541
6	1,871	4,500
6,5	1,874	4,561
7	1,874	4,561
8	1,881	4,707
9	1,884	4,770
10	1,885	4,791
11	1,8875	4,845
12	1,89	4,898
13	1,895	5,007
14	1,9	5,117
14,5	1,9	5,117
15	1,9025	5,173
16	1,902	5,162
17	1,903	5,184
18	1,9055	5,240
19	1,905	5,229
20	1,907	5,274
22	1,907	5,274
24	1,91	5,342
28	1,911	5,365
32	1,912	5,388
35	1,913	5,411
40	1,91	5,342
45	1,905	5,229
50	1,895	5,007
55	1,89	4,898
60	1,869	4,459

Tabelle 10-4

35 % Öffnung der Abluftklappe 94 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,1	1,762	2,624
0,2	1,812	3,402
0,3	1,832	3,751
0,4	1,8435	3,963
0,5	1,8605	4,290
0,6	1,8705	4,490
0,7	1,872	4,520
0,8	1,8865	4,823
0,9	1,8835	4,760
1	1,8965	5,040
1,1	1,8995	5,106
1,2	1,898	5,073
1,3	1,901	5,139
1,4	1,902	5,162
1,5	1,903	5,184
1,6	1,902	5,162
1,7	1,9025	5,173
1,8	1,905	5,229
1,9	1,907	5,274
2	1,91	5,342
2,2	1,911	5,365
2,4	1,912	5,388
2,6	1,918	5,527
2,8	1,917	5,504
3	1,9265	5,729
3,2	1,927	5,740
3,4	1,928	5,765
3,6	1,929	5,789
3,8	1,9295	5,801
4	1,929	5,789
4,5	1,931	5,837
5	1,9385	6,021
5,5	1,942	6,108
6	1,944	6,158
6,5	1,944	6,158
7	1,9475	6,247
8	1,9475	6,247
9	1,949	6,285
9,5	1,953	6,387
10	1,954	6,413
11	1,9575	6,504
12	1,964	6,675
13	1,9645	6,688
14	1,965	6,702
15	1,968	6,782
16	1,971	6,863
17	1,9745	6,958
18	1,974	6,944
19	1,973	6,917
20	1,975	6,972
22	1,976	6,999
24	1,979	7,082
28	1,983	7,193
32	1,981	7,137
33,5	1,983	7,193
35	1,983	7,193
40	1,979	7,082
45	1,971	6,863
50	1,966	6,728
55	1,949	6,285

Tabelle 10-5

35 % Öffnung der Abluftklappe *116 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige*		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,1	1,8205	3,548
0,2	1,8665	4,409
0,3	1,887	4,834
0,4	1,908	5,297
0,5	1,916	5,481
0,6	1,916	5,481
0,7	1,927	5,740
0,8	1,9235	5,657
0,9	1,936	5,959
1	1,944	6,158
1,1	1,9475	6,247
1,2	1,948	6,259
1,3	1,95	6,310
1,4	1,9485	6,272
1,5	1,954	6,413
1,6	1,957	6,491
1,7	1,9575	6,504
1,8	1,9575	6,504
1,9	1,966	6,728
2	1,9665	6,742
2,2	1,967	6,755
2,4	1,9655	6,715
2,6	1,969	6,809
2,8	1,971	6,863
3	1,973	6,917
3,25	1,9715	6,876
3,5	1,974	6,944
3,75	1,981	7,137
4	1,9785	7,068
4,5	1,985	7,249
5	1,983	7,193
5,5	1,9865	7,291
6	1,988	7,334
6,5	1,993	7,476
7	1,998	7,620
7,5	2,0005	7,693
8	2,001	7,708
8,5	2,004	7,796
9	2,007	7,885
10	2,011	8,005
11	2,015	8,126
12	2,0175	8,202
14	2,023	8,371
16	2,027	8,495
18	2,029	8,558
20	2,0345	8,732
22,5	2,0333	8,694
25	2,039	8,877
27,5	2,0385	8,861
30	2,039	8,877
32,5	2,039	8,877
35	2,039	8,877
37,5	2,038	8,845
40	2,0325	8,669
45	2,028	8,527
50	2,0155	8,141
55	2,011	8,005
60	2	7,679

Tabelle 10-6

100 % Öffnung der Abluftklappe 171 m³/h Volumenstrom laut GPCG-Anzeige		
Entfernung von der Rohrwand [mm]	U Hitzdraht [V]	Strömungsgeschwindigkeit u [m/s]
0,1	1,969	6,809
0,2	1,997	7,591
0,3	2,01	7,975
0,4	2,022	8,340
0,5	2,024	8,402
0,6	2,032	8,653
0,7	2,034	8,717
0,8	2,038	8,845
0,9	2,041	8,942
1	2,047	9,137
1,1	2,049	9,203
1,2	2,052	9,303
1,3	2,051	9,270
1,4	2,054	9,370
1,6	2,051	9,270
1,7	2,052	9,303
1,8	2,055	9,403
1,9	2,057	9,471
2	2,062	9,640
2,25	2,061	9,606
2,5	2,062	9,640
2,75	2,068	9,847
3	2,065	9,743
3,25	2,069	9,881
3,5	2,069	9,881
4	2,076	10,126
4,5	2,078	10,197
5	2,084	10,411
5,5	2,091	10,666
6	2,09	10,629
7	2,094	10,776
8	2,102	11,073
9	2,101	11,036
10	2,109	11,338
12	2,114	11,530
14	2,115	11,569
16	2,116	11,608
18	2,122	11,842
20	2,13	12,160
22,5	2,128	12,080
25	2,133	12,280
27,5	2,136	12,402
30	2,135	12,361
32,5	2,137	12,442
35	2,14	12,565
40	2,133	12,280
45	2,133	12,280
50	2,125	11,961
55	2,115	11,569
60	2,086	10,484

STRÖMUNGSPROFILE IM VERGLEICH ZU NÄHERUNGS-FUNKTIONEN

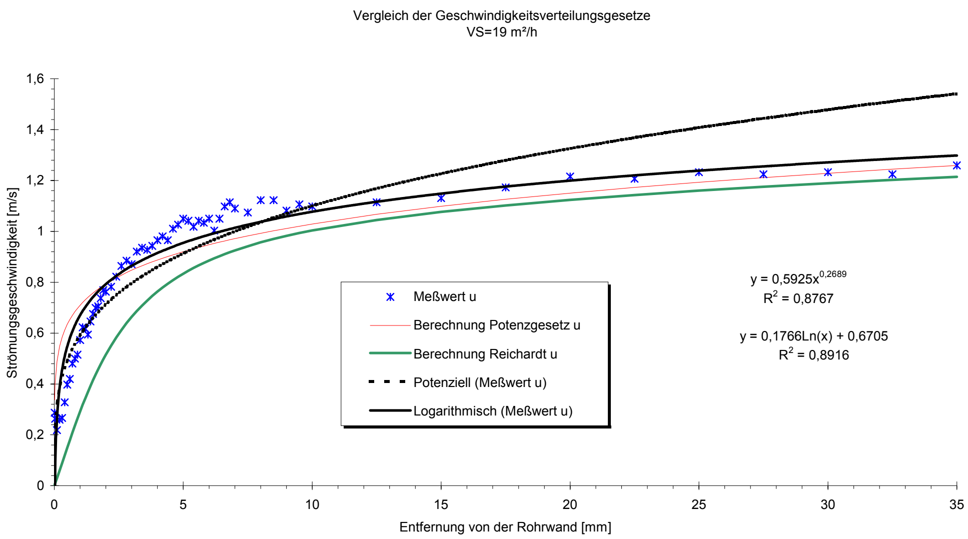


Abbildung 10-1

	Summe der Abweichungsquadrate
Potenzgesetz	0,9301
Reichardt	2,5055
Logarithmische Näherungsfunktion	**0,5850**
Potenzielle Näherungsfunktion	0,7463

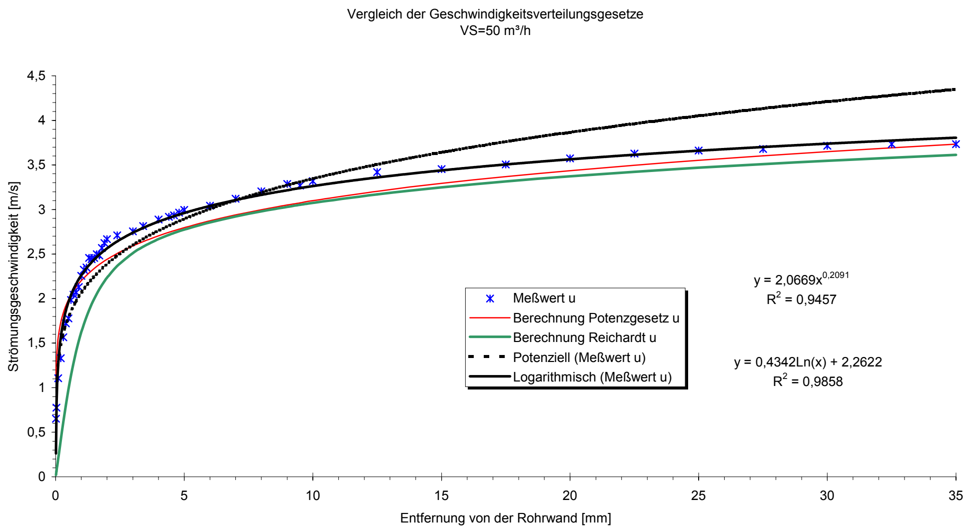


Abbildung 10-2

	Summe der Abweichungsquadrate
Potenzgesetz	1,9194
Reichardt	10,9231

Logarithmische Näherungsfunktion	**0,3985**
Potenzielle Näherungsfunktion	2,4759

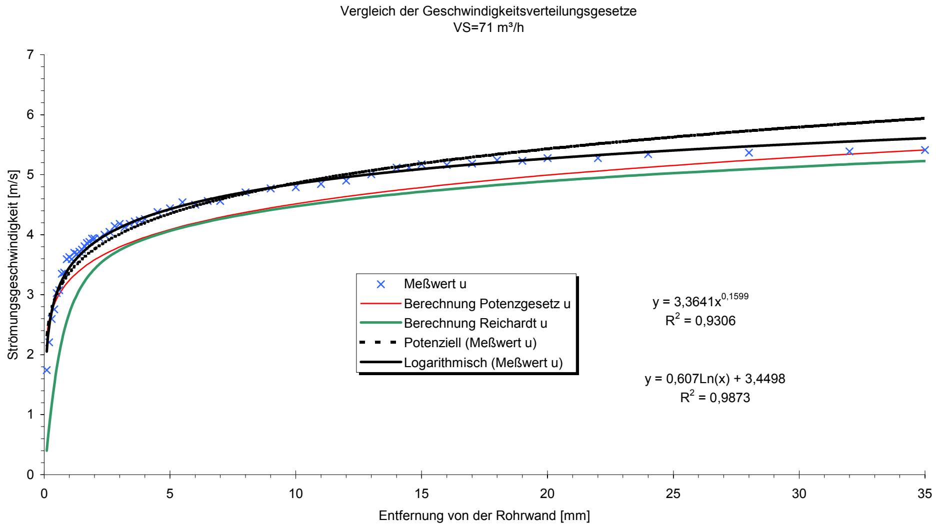


Abbildung 10-3

	Summe der Abweichungsquadrate
Potenzgesetz	5,4216
Reichardt	23,0473
Logarithmische Näherungsfunktion	**0,4945**
Potenzielle Näherungsfunktion	2,1324

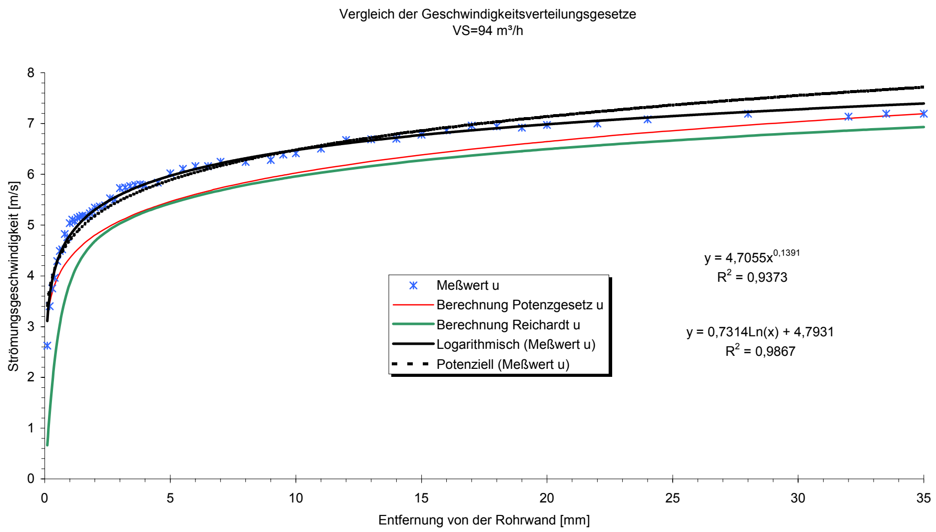


Abbildung 10-4

	Summe der Abweichungsquadra-

	te
Potenzgesetz	12,1340
Reichardt	41,3319
Logarithmische Näherungsfunktion	**0,7811**
Potenzielle Näherungsfunktion	2,8135

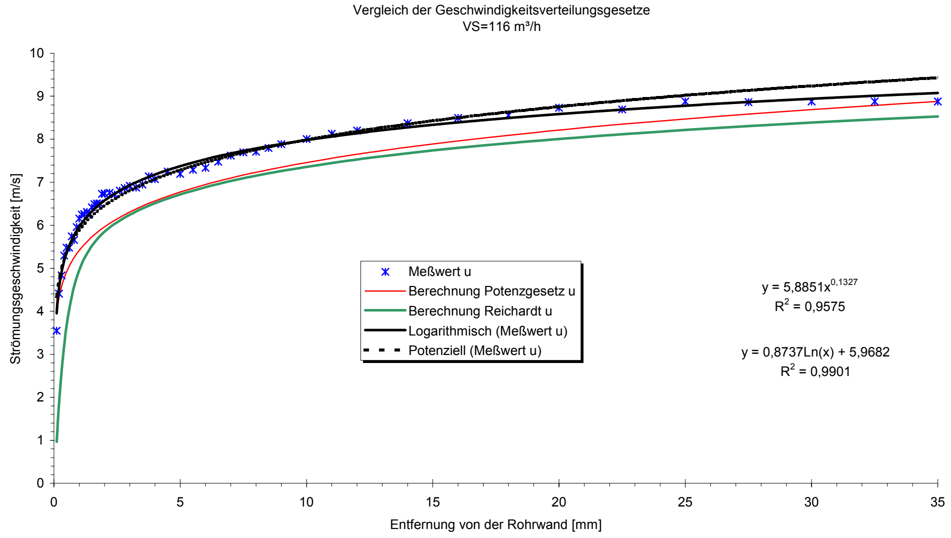
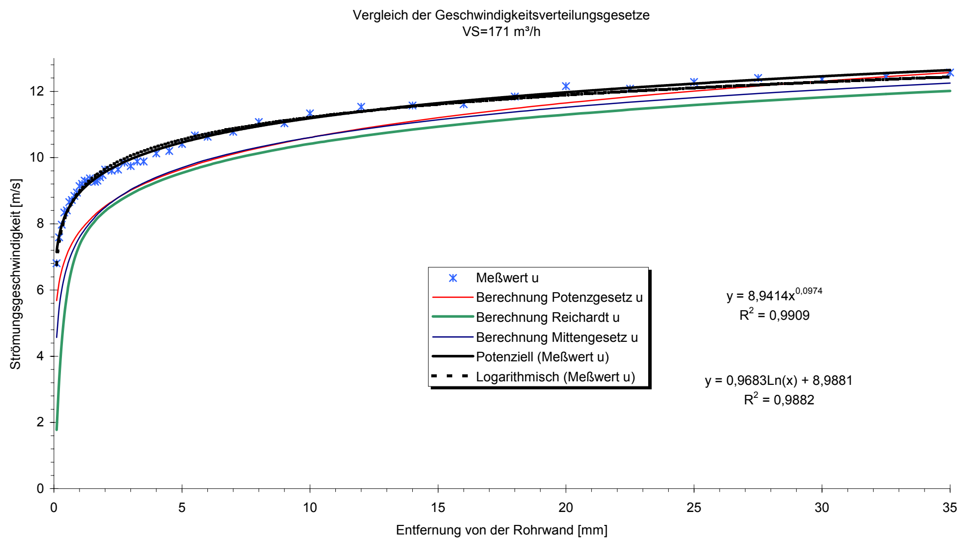


Abbildung 10-5

	Summe der Abweichungsquadrate
Potenzgesetz	15,4121
Reichardt	54,2771
Logarithmische Näherungsfunktion	**0,7613**
Potenzielle Näherungsfunktion	2,4085



	Summe der Abweichungsquadrate
Potenzgesetz	40,0846
Reichardt	126,76
Logarithmische Näherungsfunktion	1,0622
Potenzielle Näherungsfunktion	**0,6865**

VERGLEICH DER SÄTTIGUNGSDAMPFDRUCKWERTE VERSCHIEDENER NÄHERUNGSFUNKTIONEN

Tabelle 10-7 *Vergleich der Sättigungsdampfdruckwerte verschiedener Näherungsfunktionen*

Temperatur [°C]	Temperatur [K]	P_D-Tabellenwert [Pa]	ln (P_D) gem. ASHRAE	P_D gem. ASHRAE	Abweichung ASHRAE [%]	P_D gem. Glatt-Näherung	Abweichung Glatt [%]	P_D gem. Augustusformel	Abweichung Augustusformel [%]
0	273,15	611	6,42	611,21	0,03	610,78	-0,04	635,69	4,04
2	275,15	706	6,56	705,95	-0,01	705,84	-0,02	730,09	3,41
4	277,15	814	6,70	813,48	-0,06	813,71	-0,04	836,84	2,81
6	279,15	935	6,84	935,25	0,03	935,84	0,09	957,32	2,39
8	281,15	1073	6,98	1072,84	-0,01	1073,83	0,08	1093,06	1,87
10	283,15	1228	7,11	1228,00	0,00	1229,39	0,11	1245,71	1,44
12	285,15	1403	7,25	1402,59	-0,03	1404,39	0,10	1417,07	1,00
14	287,15	1599	7,38	1598,67	-0,02	1600,86	0,12	1609,12	0,63
16	289,15	1819	7,51	1818,44	-0,03	1821,01	0,11	1823,98	0,27
18	291,15	2064	7,63	2064,29	0,01	2067,20	0,16	2063,98	0,00
20	293,15	2339	7,76	2338,80	-0,01	2342,00	0,13	2331,61	-0,32
22	295,15	2645	7,88	2644,75	-0,01	2648,16	0,12	2629,61	-0,58
24	297,15	2985	8,00	2985,13	0,00	2988,65	0,12	2960,89	-0,81
26	299,15	3363	8,12	3363,13	0,00	3366,65	0,11	3328,62	-1,02
28	301,15	3781	8,24	3782,21	0,03	3785,57	0,12	3736,21	-1,18
30	303,15	4246	8,35	4246,03	0,00	4249,08	0,07	4187,32	-1,38
32	305,15	4758	8,47	4758,53	0,01	4761,06	0,06	4685,89	-1,52
34	307,15	5323	8,58	5323,91	0,02	5325,68	0,05	5236,15	-1,63
36	309,15	5945	8,69	5946,64	0,03	5947,39	0,04	5842,63	-1,72
38	311,15	6630	8,80	6631,47	0,02	6630,91	0,01	6510,17	-1,81
40	313,15	7381	8,91	7383,46	0,03	7381,26	0,00	7243,96	-1,86
42	315,15	8205	9,01	8207,97	0,04	8203,77	-0,01	8049,54	-1,89
44	317,15	9108	9,12	9110,67	0,03	9104,10	-0,04	8932,82	-1,92
46	319,15	10094	9,22	10097,60	0,04	10088,22	-0,06	9900,10	-1,92
48	321,15	11171	9,32	11175,09	0,04	11162,47	-0,08	10958,07	-1,91
50	323,15	12344	9,42	12349,86	0,05	12333,53	-0,08	12113,87	-1,86
52	325,15	13623	9,52	13628,98	0,04	13608,46	-0,11	13375,08	-1,82
54	327,15	15012	9,62	15019,89	0,05	14994,69	-0,12	14749,71	-1,75
56	329,15	16522	9,71	16530,44	0,05	16500,05	-0,13	16246,30	-1,67
58	331,15	18159	9,81	18168,85	0,05	18132,77	-0,14	17873,86	-1,57
60	333,15	19932	9,90	19943,76	0,06	19901,51	-0,15	19641,94	-1,46
62	335,15	21851	9,99	21864,23	0,06	21815,34	-0,16	21560,64	-1,33
64	337,15	23925	10,08	23939,73	0,06	23883,77	-0,17	23640,60	-1,19

Temperatur [°C]	Temperatur [K]	P_D-Tabellen-wert [Pa]	ln (P_D) gem. ASHRAE	P_D gem. ASHRAE	Abweichung ASHRAE [%]	P_D gem. Glatt-Näherung	Abweichung Glatt [%]	P_D gem. Augustusfor-mel	Abweichung Augustus-formel [%]
66	339,15	26163	10,17	26180,19	0,07	26116,77	-0,18	25893,08	-1,03
68	341,15	28576	10,26	28595,97	0,07	28524,79	-0,18	28329,93	-0,86
70	343,15	31176	10,35	31197,90	0,07	31118,71	-0,18	30963,63	-0,68
72	345,15	33972	10,43	33997,26	0,07	33909,93	-0,18	33807,33	-0,48
74	347,15	36978	10,52	37005,82	0,08	36910,34	-0,18	36874,85	-0,28
76	349,15	40205	10,60	40235,82	0,08	40132,33	-0,18	40180,70	-0,06
78	351,15	43665	10,69	43700,01	0,08	43588,80	-0,17	43740,12	0,17
80	353,15	47373	10,77	47411,61	0,08	47293,20	-0,17	47569,10	0,41
82	355,15	51342	10,85	51384,37	0,08	51259,49	-0,16	51684,39	0,67
84	357,15	55585	10,93	55632,55	0,09	55502,20	-0,15	56103,54	0,93
86	359,15	60119	11,00	60170,92	0,09	60036,39	-0,14	60844,92	1,21
88	361,15	64958	11,08	65014,80	0,09	64877,72	-0,12	65927,73	1,49
90	363,15	70117	11,16	70180,01	0,09	70042,40	-0,11	71372,04	1,79
92	365,15	75614	11,23	75682,95	0,09	75547,22	-0,09	77198,82	2,10
94	367,15	81465	11,31	81540,53	0,09	81409,57	-0,07	83429,93	2,41
96	369,15	87688	11,38	87770,24	0,09	87647,44	-0,05	90088,17	2,74
98	371,15	94301	11,46	94390,10	0,09	94279,42	-0,02	97197,33	3,07
100	373,15	101320	11,53	101418,72	0,10	101324,72	0,00	104782,14	3,42

INTEGRATION DER GESCHWINDIGKEITSVERTEILUNGS-GESETZE ÜBER DEN ROHRQUERSCHNITT

Numerische Integration

Die Berechnung des Integrals 5.51 kann numerisch erfolgen. Mit Hilfe der Trapezregel wird jeweils der Teilvolumenstrom eines Kreisrings berechnet. Die Summe dieser Anteile entspricht dem Gesamtvolumenstrom, der das Rohr passiert. Die Kreisringe werden jeweils durch zwei Messpunkte der Strömungsgeschwindigkeitsmessung begrenzt. Es gilt:

$$\dot{V} = 2\pi \sum_{i=1}^{n} u_i \cdot r_i \cdot \Delta r$$

Für die Berechnung des Teilvolumenstroms werden jeweils die arithmetischen Mittelwerte der Messwerte der begrenzenden Messpunkte verwendet:

$$u = \frac{u_{i-1} + u_i}{2}$$

$$r = \frac{r_{i-1} + r_i}{2}$$

Der erste Messpunkt liegt aus messtechnischen Gründen immer im Abstand 0,1 mm von der Rohrwand entfernt. Folglich gilt für den äußersten Kreisring:

$$\dot{V}_0 = 2\pi \cdot (35\,mm - \frac{0{,}1\,mm}{2}) \cdot 0{,}1\,mm \cdot \frac{u}{2}$$

Für den inneren Kreis gilt:

$$\dot{V}_{last} = \pi r^2 \cdot \frac{u_{last} + u_{\max}}{2}$$

Exemplarisch sind die Messwerte und deren Auswertung am Beispiel 100 % Öffnung der Abluftklappe (entsprechend einem Volumenstrom von 171 m³/h laut GPCG-Anzeige) dargestellt:

Tabelle 10-8 *Integration des Strömungsprofils für maximalen Volumenstrom*

Entfernung von der Rohrwand [mm]	Strömungsgeschwindigkeit [m/s]	Partieller Volumenstrom [m³/h]
0,1	6,809	0,269
0,2	7,591	0,568
0,3	7,975	0,612
0,4	8,340	0,639
0,5	8,402	0,654
0,6	8,653	0,664
0,7	8,717	0,675
0,8	8,845	0,680
0,9	8,942	0,687
1	9,137	0,696
1,1	9,203	0,704
1,2	9,303	0,708
1,3	9,270	0,709
1,4	9,370	0,709
1,6	9,270	1,412
1,7	9,303	0,701
1,8	9,403	0,703
1,9	9,471	0,708
2	9,640	0,714
2,25	9,606	1,789
2,5	9,640	1,775
2,75	9,847	1,784
3	9,743	1,779
3,25	9,881	1,769
3,5	9,881	1,767
4	10,126	3,536
4,5	10,197	3,534
5	10,411	3,525
5,5	10,666	3,546
6	10,629	3,522
7	10,776	6,899
8	11,073	6,795
9	11,036	6,626
10	11,338	6,453
12	11,530	12,415
14	11,569	11,495
16	11,608	10,485
18	11,842	9,548
20	12,160	8,687
22,5	12,080	9,424
25	12,280	7,749
27,5	12,402	6,106
30	12,361	4,376
32,5	12,442	2,630
35	12,565	0,884

Entfernung von der Rohrwand [mm]	Strömungsgeschwindigkeit [m/s]	Partieller Volumenstrom [m³/h]
Summe:		***152,111***

Der effektive Volumenstrom beträgt 152,11 m³/h und liegt damit um 11 % unter dem von dem GPCG gelieferten Messwert. Bei allen weiteren Versuchen liegt der durch numerische Berechnung ermittelte Wert des Volumenstroms im Durchschnitt 11,7 % unter dem GPCG-Wert, wie folgende Übersicht zeigt:

Tabelle 10-9 *Ergebnis nummerischer Bestimmung*

VS laut GPCG [m³/h]	VS gem. nummerischer Bestimmung [m³/h]	Abweichung [%]
19	14,3889	-24,26
50	43,92921303	-12,14
71	64,87253741	-8,63
94	87,07869663	-7,36
116	107,6407272	-7,20
171	152,1109475	-11,04

Eine Erhöhung der Genauigkeit ist möglich, wenn der Berechnung an Stelle der Messwerte die über die Näherungsfunktion ermittelten Strömungsgeschwindigkeitswerte zugrunde gelegt werden. Die folgende Abbildung zeigt das mit der logarithmischen Näherungsfunktion 5.50 ermittelte Strömungsprofil sowie den partiellen Volumenstrom eines Kreisrings mit der einheitlichen Stärke von 0,1 mm.

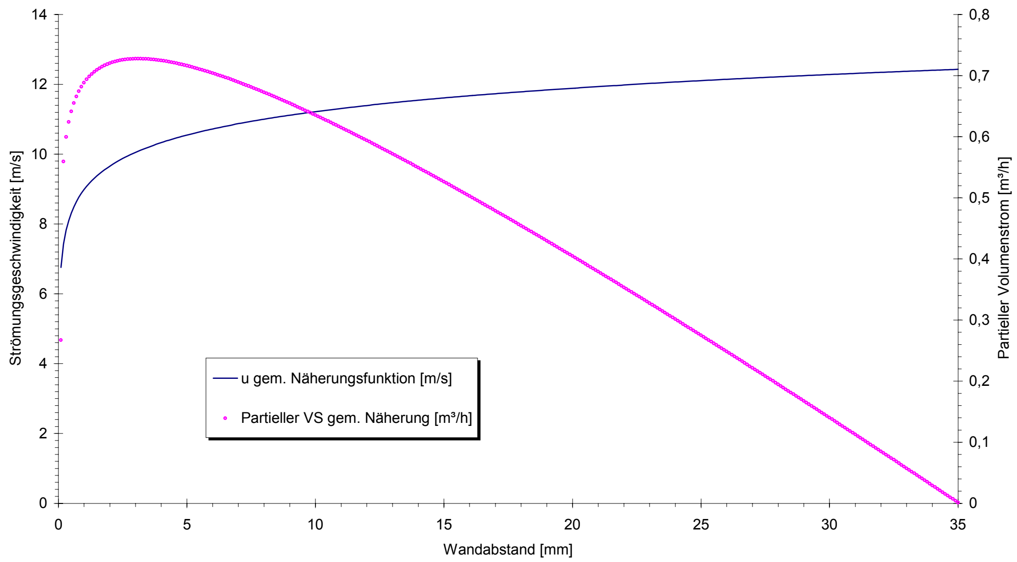


Abbildung 10-6 *Diskrete Volumenstromberechnung mittels Näherungsfunktion, Intervallbreite der Kreisringe 0,1 mm*

Dieser Darstellung ist zu entnehmen, dass der Partialvolumenstrom der Kreisringe im wandnahen Bereich den größten Beitrag zum Gesamtvolumenstrom liefert. Hier ist demnach eine besonders exakte Messung des Strömungsprofils mit geringem Abstand der Messpunkte erforderlich. Im vorliegenden Fall maximalen Volumenstromes ist die Näherungsfunktion:

$$u = 0{,}9683 \cdot \ln(y) + 8{,}9881$$

verwendet worden. Hierbei wird ein Volumenstrom von 151,901 m³/h errechnet.

Zum ergänzenden Vergleich wird die Berechnung des Volumenstromes nach Gleichung 2.32 über das Produkt von Rohrquerschnittsfläche und mittlerer Strömungsgeschwindigkeit durchgeführt:

$$\dot{V} = \pi R^2 \cdot \overline{u} = \pi \cdot (0{,}035\,m)^2 \cdot 10{,}878\,m/s$$
$$\dot{V} = 0{,}04186\,m^3/s$$
$$\dot{V} = 150{,}7084\,m^3/h$$

Dieser Wert weicht damit um weniger als 1 % von dem mittels numerischer Integration bestimmten Wert ab.

Integration des Potenzgesetzes
Das Integral 5.51 kann alternativ berechnet werden, indem die Stammfunktion des Geschwindigkeitsverteilungsgesetzes ermittelt wird. Absicht der folgenden Berechnungen ist es, einen mathematischen Zusammenhang zwischen der maximalen Strömungsgeschwindigkeit in der Rohrmitte und dem daraus resultierenden Volumenstrom herzuleiten. Durch Kombination der Gleichungen 5.51 und 5.34 mit:

$$\dot{V} = 2\pi \int_0^R u \cdot r \cdot dr \qquad \text{und} \qquad u = u_{max} \cdot \left(\frac{R-r}{R}\right)^{\frac{1}{n}}$$

resultiert durch Einsetzen des Potenzgesetzes in den Integralausdruck:

$$\dot{V} = 2\pi \int_0^R r \cdot u_{max} \cdot \left(\frac{R-r}{R}\right)^{\frac{1}{n}} \cdot dr$$

$$\dot{V} = \frac{2\pi \cdot u_{max}}{R^{\frac{1}{n}}} \int_0^R r \cdot (R-r)^{\frac{1}{n}} \cdot dr$$

Durch Anwendung der allgemeinen Integrationsregel[208]:

$$\int x(ax+b)^n \, dx = \frac{(ax+b)^{n+2}}{a^2(n+2)} - \frac{b(ax+b)^{n+1}}{a^2(n+1)} + C \qquad (10.1)$$

lässt sich die Stammfunktion einfach ermitteln:

$$\dot{V} = \frac{2\pi u_{max}}{\sqrt[n]{R}} \left[\frac{(R-r)^{\frac{1}{n}+2}}{(-1)^2 \cdot \left(\frac{1}{n}+2\right)} - \frac{R(R-r)^{\frac{1}{n}+1}}{(-1)^2 \cdot \left(\frac{1}{n}+1\right)} \right] \Bigg|_0^R$$

$$\dot{V} = \frac{2\pi u_{\max}}{\sqrt[n]{R}}(R-r)^{\frac{1}{n}}\left[\frac{(R-r)^2}{\left(\frac{1}{n}+2\right)} - \frac{R(R-r)}{\left(\frac{1}{n}+1\right)}\right]\Bigg|_0^R$$

Durch Einsetzen der Integrationsgrenzen resultiert zunächst:

$$\dot{V} = -\frac{2\pi u_{\max}}{\sqrt[n]{R}}R^{\frac{1}{n}}\left[\frac{R^2}{\left(\frac{1}{n}+2\right)} - \frac{R^2}{\left(\frac{1}{n}+1\right)}\right]$$

Durch weiteres Zusammenfassen folgt damit ein allgemeiner Ausdruck für die Berechnung des Volumenstromes in Abhängigkeit von der in der Rohrmitte gemessenen maximalen Strömungsgeschwindigkeit:

$$\dot{V} = 2\pi u_{\max} R^2\left[\frac{1}{\left(\frac{1}{n}+1\right)} - \frac{1}{\left(\frac{1}{n}+2\right)}\right] \tag{10.2}$$

Für das Beispiel maximalen Volumenstromes gilt demzufolge:

$$\dot{V} = 2\pi \cdot 12{,}565\frac{m}{s}\cdot(0{,}035\,m)^2\left[\frac{1}{\left(\frac{1}{7{,}38}+1\right)} - \frac{1}{\left(\frac{1}{7{,}38}+2\right)}\right]$$

$$\dot{V} = 0{,}03988\frac{m^3}{s} = 0{,}03988\frac{m^3}{\frac{1}{3600}h}$$

$$\dot{V} = 143{,}579\frac{m^3}{h}$$

Die entsprechende Berechnung führt bei den anderen Strömungszuständen des GPCG zu folgenden Werten:

Tabelle 10-10 *Ergebnisse der Berechnungen mittels Potenzgesetz*

VS laut GPCG [m^3/h]	u_{max} [m/s]	n	VS laut Potenzgesetz [m^3/h]
19	1,259	6,19	13,894
50	3,733	6,73	41,914
71	5,411	6,92	61,087
94	7,193	7,08	81,561
116	8,877	7,19	100,949

171	12,565	7,38	143,579

Integration des Reichardtschen Gesetzes

Die Berechnung des Integrals 5.51 mit dem Reichardtschen Gesetz erfolgt analog durch Einsetzen des Geschwindigkeitsverteilungsgesetzes in den Integralausdruck gemäß:

$\dot{V} = 2\pi \int_0^R u \cdot r \cdot dr$ und gemäß Gleichung 5.48 $u = \dfrac{u^+}{\dfrac{1}{\bar{u}} \cdot \sqrt{\dfrac{8}{\zeta}}} = \dfrac{u^+}{const} \equiv \dfrac{u^+}{A}$

$$\dot{V} = \frac{2\pi}{A} \int_0^R u^+ \cdot r \cdot dr$$

Die Variable der dimensionslosen Strömungsgeschwindigkeit wird mit Gleichung 5.45 substituiert:

$$\dot{V} = \frac{2\pi}{A} \int_0^R \left(\frac{1}{\kappa} \cdot \ln\left(1 + \kappa \cdot y^+\right) + 7{,}8 \cdot \left[1 - e^{-\frac{y^+}{11}} - \frac{y^+}{11} \cdot e^{-0{,}33 \cdot y^+} \right] \right) \cdot r \cdot dr$$

$$\dot{V} = \frac{2\pi}{A} \int_0^R \frac{1}{\kappa} \cdot \ln\left(1 + \kappa \cdot y^+\right) \cdot r \cdot dr + \frac{2\pi}{A} \int_0^R 7{,}8 \cdot 1 \cdot r \cdot dr - \frac{2\pi}{A} \int_0^R 7{,}8 \cdot e^{-\frac{y^+}{11}} \cdot r \cdot dr - \frac{2\pi}{A} \int_0^R 7{,}8 \cdot \frac{y^+}{11} \cdot e^{-0{,}33 \cdot y^+} \cdot r \cdot dr$$

Als Ergebnis weiterer Zusammenfassungen wird folgende Gleichung erhalten:

$$\dot{V} = \frac{2\pi}{A \cdot \kappa} \int_0^R \ln\left(1 + \kappa \cdot y^+\right) \cdot r \cdot dr + \frac{15{,}6\pi}{A} \int_0^R r \cdot dr - \frac{15{,}6\pi}{A} \int_0^R e^{-\frac{y^+}{11}} \cdot r \cdot dr - \frac{1{,}418 \cdot \pi}{A} \int_0^R y^+ \cdot e^{-0{,}33 \cdot y^+} \cdot r \cdot dr \qquad (10.3)$$

Jetzt muss noch der dimensionslose Wandabstand mit Hilfe von Gleichung 5.47 substituiert werden:

$$y^+ = \frac{\bar{u}}{\nu} \cdot \sqrt{\frac{\zeta}{8}} \cdot y = const \cdot y \equiv B \cdot y$$

Der Wandabstand y ist gerade die Differenz aus Rohrradius und Parameter r:

$$y = R - r$$

und somit:

$$y^+ = B \cdot (R - r)$$

Das Einsetzen dieses Ausdruckes für y^+ in Gleichung 10.3 ergibt eine Summe von Integralen, deren Integranden neben Konstanten nur noch die Variable r enthalten und damit lösbar werden. Aus Übersichtlichkeitsgründen wird diese Summe der Integrale im Folgenden summandenweise bearbeitet:

1. Summand:

$$\frac{2\pi}{A\cdot\kappa}\int_0^R \ln\left(1+\kappa\cdot B\cdot(R-r)\right)\cdot r\cdot dr \tag{10.4}$$

Substitution der Summe im Logarithmusausdruck

$$x \equiv 1+\kappa\cdot B\cdot(R-r) \qquad \Rightarrow \qquad r=\frac{1+\kappa BR-x}{\kappa B}$$

Mit

$$\frac{dx}{dr}=-\kappa B \qquad \Leftrightarrow \qquad dr=-\frac{dx}{\kappa B}$$

folgt damit aus Gleichung 10.1:

$$\frac{2\pi}{A\cdot\kappa}\int \ln(x)\cdot\frac{1+\kappa BR-x}{\kappa B}\cdot\left(-\frac{dx}{\kappa B}\right)$$

$$\frac{2\pi}{A\cdot\kappa}\int \ln(x)\cdot\frac{x-\kappa BR-1}{(\kappa B)^2}dx$$

$$\frac{2\pi}{A\cdot B^2\cdot\kappa^3}\left[\int x\ln(x)dx-\int(\kappa BR+1)\ln(x)dx\right]$$

$$\frac{2\pi}{AB^2\kappa^3}\left[\int x\ln(x)dx-(\kappa BR+1)\int\ln(x)dx\right] \tag{10.5}$$

Gemäß den allgemeinen Integrationsregeln[207]:

$$\int \ln x dx = x\ln x - x + C$$

$$\int x^m \ln x dx = x^{m+1}\left(\frac{\ln x}{m+1}-\frac{1}{(m+1)^2}\right)+C \tag{10.6}$$

lässt sich nun 10.5 leicht berechnen:

$$\frac{2\pi}{AB^2\kappa^3}\left[x^2\left(\frac{\ln x}{2}-\frac{1}{4}\right)+C-(\kappa BR+1)(x\ln x-x)+C\right]$$

$$\frac{2\pi}{AB^2\kappa^3}\left[x^2\left(\frac{\ln x}{2}-\frac{1}{4}\right)+C-(\kappa BR+1)\cdot x\cdot(\ln x-1)+C\right]$$

Resubstitution mit $x=1+\kappa B(R-r)$ führt schließlich zu

$$\frac{2\pi}{AB^2\kappa^3}\left[(1+\kappa B(R-r))^2\left(\frac{\ln(1+\kappa B(R-r))}{2}-\frac{1}{4}\right)\Bigg|_0^R-(\kappa BR+1)\cdot(1+\kappa B(R-r))\cdot\left[\ln(1+\kappa B(R-r))-1\right]_0^R\right] \tag{10.7}$$

Aus Übersichtlichkeitsgründen werden die beiden Summanden innerhalb der eckigen Klammern durch Einsetzen der Integrationsgrenzen getrennt berechnet:

$$\left(1+\kappa B(R-r)\right)^2\left(\frac{\ln\left(1+\kappa B(R-r)\right)}{2}-\frac{1}{4}\right)\Bigg|_0^R=\left(\frac{\ln(1)}{2}-\frac{1}{4}\right)-\left(1+\kappa BR\right)^2\left(\frac{\ln(1+\kappa BR)}{2}-\frac{1}{4}\right)$$

Für den zweiten Term gilt:

$$-(\kappa BR+1)\cdot\left(1+\kappa B(R-r)\right)\cdot\left[\ln\left(1+\kappa B(R-r)\right)-1\right]_0^R=-(\kappa BR+1)\cdot(1)\cdot[\ln(1)-1]+(\kappa BR+1)\cdot(1+\kappa BR)\cdot[\ln(1+\kappa BR)-1]$$

$$=(\kappa BR+1)[(1-\ln(1))+(\kappa BR+1)\cdot(\ln(1+\kappa BR)-1)]$$

Die Berechnungsformel für den ersten Summanden 10.3 resultiert damit zu

$$\frac{2\pi}{AB^2\kappa^3}\cdot\left\{\left(\frac{\ln(1)}{2}-\frac{1}{4}\right)-(1+\kappa BR)^2\left(\frac{\ln(1+\kappa BR)}{2}-\frac{1}{4}\right)+(\kappa BR+1)[(1-\ln(1))+(\kappa BR+1)\cdot(\ln(1+\kappa BR)-1)]\right\} \quad (10.8)$$

<u>2. Summand:</u>

$$\frac{15{,}6\pi}{A}\int_0^R r\cdot dr=\frac{7{,}8\pi}{A}\cdot r^2\Bigg|_0^R=\frac{7{,}8\pi R^2}{A}$$

$$\frac{7{,}8\pi R^2}{A} \quad (10.9)$$

<u>3. Summand:</u>

$$-\frac{15{,}6\pi}{A}\int_0^R e^{-\frac{B\cdot(R-r)}{11}}\cdot r\cdot dr$$

Entsprechend den allgemeinen Integrationsregeln[207]

$$\int x\cdot e^{ax}dx=\frac{e^{ax}}{a^2}(ax-1)+C \quad (10.10)$$

$$e^{A+B}=e^A\cdot e^B \quad (10.11)$$

gilt:

$$-\frac{15{,}6\pi}{A}\cdot e^{-\frac{BR}{11}}\cdot\int_0^R r\cdot e^{\frac{B}{11}\cdot r}dr$$

$$-\frac{15{,}6\pi}{A}\cdot e^{-\frac{BR}{11}}\cdot\left(\frac{e^{\frac{B}{11}\cdot r}}{\frac{B^2}{121}}\left(\frac{B}{11}r-1\right)\right)+C$$

$$-\frac{1887{,}6\pi}{AB^2}\cdot\left(\frac{B}{11}r-1\right)\cdot e^{\frac{B}{11}\cdot(r-R)}\Bigg|_0^R \qquad (10.12)$$

Durch Einsetzen der Integrationsgrenzen resultiert daraus:

$$-\frac{1887{,}6\pi}{AB^2}\cdot\left(\frac{B}{11}R-1\right)-\left\{-\frac{1887{,}6\pi}{AB^2}\cdot(-1)\cdot e^{-\frac{B}{11}\cdot R}\right\}$$

$$-\frac{1887{,}6\pi}{AB^2}\cdot\left[\frac{BR}{11}-1+e^{-\frac{BR}{11}}\right] \qquad (10.13)$$

<u>4. Summand:</u>

$$-\frac{1{,}418\pi}{A}\int_0^R B(R-r)\cdot r\cdot e^{-0{,}33\cdot B\cdot(R-r)}dr$$

$$-\frac{1{,}418\pi}{A}\left[\int_0^R BRr\cdot e^{-0{,}33\cdot B\cdot(R-r)}dr-\int_0^R Br^2\cdot e^{-0{,}33\cdot B\cdot(R-r)}dr\right]$$

$$-\frac{1{,}418\pi}{A}\left[BR\cdot\int_0^R r\cdot e^{-0{,}33\cdot BR+0{,}33Br}dr-B\cdot\int_0^R r^2\cdot e^{-0{,}33\cdot BR+0{,}33Br}dr\right]$$

Gemäß 10.11 gilt folgerichtig:

$$-\frac{1{,}418\pi}{A}\left[BR\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\cdot\int_0^R r\cdot e^{0{,}33Br}dr-B\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\cdot\int_0^R r^2\cdot e^{0{,}33Br}dr\right]$$

$$-\frac{1{,}418\pi B}{A}\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\left[R\cdot\int_0^R r\cdot e^{0{,}33Br}dr-\int_0^R r^2\cdot e^{0{,}33Br}dr\right]$$

Auch in diesem Fall können die allgemeinen Integrationsregeln 10.10 und 4.55 erfolgreich angewendet werden[207]

$$\int x^2\cdot e^{ax}dx=e^{ax}\left(\frac{x^2}{a}-\frac{2x}{a^2}+\frac{2}{a^3}\right)+C$$

(10.14)

$$-\frac{1{,}418\pi B}{A}\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\left[R\cdot\frac{e^{0{,}33Br}}{(0{,}33B)^2}(0{,}33Br-1)\Big|_0^R-e^{0{,}33Br}\left(\frac{r^2}{0{,}33B}-\frac{2r}{(0{,}33B)^2}+\frac{2}{(0{,}33B)^3}\right)\Bigg|_0^R\right]$$

Durch Einsetzen der Integrationsgrenzen wird die Bestimmungsgleichung für den vierten Summanden erhalten:

$$-\frac{1{,}418\pi B}{A}\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\left[\frac{R\cdot(0{,}33BR-1)\cdot e^{0{,}33BR}}{(0{,}33B)^2}-R\cdot\frac{e^0}{(0{,}33B)^2}(-1)-e^{0{,}33BR}\left(\frac{R^2}{0{,}33B}-\frac{2R}{(0{,}33B)^2}+\frac{2}{(0{,}33B)^3}\right)+e^0\frac{2}{(0{,}33B)^3}\right]$$

$$-\frac{1{,}418\pi B}{A}\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\left[R\cdot\frac{(0{,}33BR-1)\cdot e^{0{,}33BR}+1}{(0{,}33B)^2}-e^{0{,}33BR}\left(\frac{R^2}{0{,}33B}-\frac{2R}{(0{,}33B)^2}+\frac{2}{(0{,}33B)^3}\right)+\frac{2}{(0{,}33B)^3}\right]$$

$$-\frac{1{,}418\pi B}{A(0{,}33B)^3}\cdot e^{-0{,}33\cdot BR}\left[R(0{,}33B)\left((0{,}33BR-1)\cdot e^{0{,}33BR}+1\right)-e^{0{,}33BR}\left(0{,}1089B^2R^2-0{,}66BR+2\right)+2\right] \qquad (10.15)$$

Wiederum am Beispiel maximaler Durchströmung des GPCG wird nun die Volumenstromberechnung mit Hilfe des Reichardtschen Ansatzes durchgeführt. Wie in vorausgegangenen Berechnungen ermittelt worden ist gilt:

A = 1,906 m/s
B = 33437 m^{-1}
R = 0,035 m
K = 0,40

Einsetzen dieser Werte in die Berechnungsgleichungen ergibt:

1. Summand: 0,023641788
2. Summand: 0,015770718
3. Summand: -0,000293044
4. Summand: -2,23309·10^{-5}

Summe: 0,039097131 m^3/s

Die Umrechnung in m^3/h führt zu einem Volumenstrom von:

$$\dot{V} = 140{,}749\, m^3/h$$

Integration der potenziellen Näherungsfunktion
Wird der Geschwindigkeitsverteilung eine Potenzfunktion zugrundegelegt, so lässt sich der entsprechende Volumenstrom ausgehend von Gleichung 5.51 berechnen:

$$\dot{V} = 2\pi\int_0^R u\cdot r\cdot dr \qquad \text{und} \qquad u = A\cdot y^B$$

Der Wandabstand y wird durch R – r ausgedrückt, so dass gilt:

$$\dot{V} = 2A\pi\int_0^R (R-r)^B\cdot r\cdot dr$$

In Analogie zu der allgemeinen Integrationsregel[208]

$$\int x(ax+b)^n\,dx = \frac{(ax+b)^{n+2}}{a^2(n+2)} - \frac{b(ax+b)^{n+1}}{a^2(n+1)} + C$$

(10.16)

gilt damit:

$$\dot{V} = 2A\pi\left[\frac{(R-r)^{B+2}}{B+2} - \frac{R(R-r)^{B+1}}{B+1}\right]\Bigg|_0^R$$

Da das Einsetzen der oberen Integrationsgrenze zu Null führt, vereinfacht sich die Berechnungsformel zu:

$$\dot{V} = 2A\pi R^{B+2}\left[\frac{1}{B+1} - \frac{1}{B+2}\right]$$

(10.17)

So gilt für die maximale Durchströmung des GPCG:

$$\dot{V} = 2\cdot 17{,}521\cdot\pi\cdot 0{,}035^{0{,}0974+2}\left[\frac{1}{0{,}0974+1} - \frac{1}{0{,}0974+2}\right] = 0{,}04226\,m^3/s$$

$$\dot{V} = 0{,}04226\frac{m^3}{\frac{1}{3600}h} = 152{,}168\,m^3/h$$

Integration der logarithmischen Näherungsfunktion

Für die logarithmische Näherungsfunktion gilt analog:

$$\dot{V} = 2\pi\int_0^R u\cdot r\cdot dr \qquad \text{und} \qquad u = A\cdot\ln(y) + B$$

Mit der Substitution des Wandabstands y durch R – r resultiert:

$$\dot{V} = 2\pi\int_0^R \big(A\ln(R-r) + B\big)\cdot r\cdot dr$$

$$\dot{V} = 2\pi A\int_0^R \ln(R-r)\cdot r\cdot dr + 2\pi B\int_0^R r\cdot dr \qquad (10.18)$$

Die Berechnung der Stammfunktion des ersten Integrals ist durch folgende Substitution der Integrationsvariablen möglich:

$$x \equiv R - r$$

Mit

$$\frac{dx}{dr} = -1 \qquad \Leftrightarrow \qquad dr = -dx$$

folgt:

$$\int \ln(x)\cdot(R-x)\cdot(-1)dx = \int x\ln(x)dx - R\int \ln x dx \qquad (10.19)$$

Gemäß den allgemeinen Integrationsregeln[207] gilt:

$$\int x\ln x dx = x^2\left(\frac{\ln x}{2}-\frac{1}{4}\right)+C$$
$$\int \ln x dx = x\ln x - x + C \qquad (10.20)$$

Damit gilt für 10.19

$$\int \ln(x)\cdot(R-x)\cdot(-1)dx = x^2\left(\frac{\ln x}{2}-\frac{1}{4}\right) - R\left(x\ln x - x\right)+C$$

Resubstitution und Einsetzen in 5.51 ergibt damit:

$$\dot{V} = 2\pi A(R-r)\left[(R-r)\left(\frac{\ln(R-r)}{2}-\frac{1}{4}\right)-R\left(\ln(R-r)-1\right)\right]\Bigg|_0^R + \pi B r^2\Big|_0^R$$

Durch das Einsetzen der Grenzen folgt damit die allgemeine Berechnungsformel:

$$\dot{V} = -2\pi AR\left[R\left(\frac{\ln R}{2}-\frac{1}{4}\right)-R\left(\ln(R)-1\right)\right]+\pi BR^2$$

$$\dot{V} = -2\pi AR^2\left[\frac{\ln R}{2}-\frac{1}{4}-\ln(R)+1\right]+\pi BR^2$$

$$\dot{V} = 2\pi AR^2\left[\frac{\ln R}{2}-\frac{3}{4}\right]+\pi BR^2$$

$$\dot{V} = \pi R^2\left[2A\left(\frac{\ln R}{2}-\frac{3}{4}\right)+B\right]$$

(10.21)

Der Volumenstrom bei maximaler Durchströmung des GPCG resultiert damit zu:

$$\dot{V} = \pi\, 0{,}035^2\left[2\cdot 0{,}9683\cdot\left(\frac{\ln 0{,}035}{2}-\frac{3}{4}\right)+15{,}677\right]$$

$$\dot{V} = 0{,}0422499\,\frac{m^3}{\frac{1}{3600}h} = 152{,}099\, m^3/h$$

PROGRAMME UND MAKROS

SAS-Quellcode zur Ermittlung des Exponenten n im Potenzgesetz

```
/***************************************************************/
/*          S A S   Q U E L L C O D E                          */
/*                                                             */
/*     NAME: Nichtlineare_Regression.sas                       */
/*                                                             */
/*    TITLE: Stroemungsprofil Maximalgeschwindigkeit           */
/*                                                             */
/*                                                             */
/*     KEYS: NLIN                                              */
/*    PROCS: NLIN, PLOT                                        */
/*     DATE: 04.08.2000                                        */
/*      TEL: +49-171/2720032                                   */
/*   Email: u.koester@pharmazie.uni-wuerzburg.de               */
/*                                                             */
/*                (c) Ulf Koester                              */
/*                                                             */
/***************************************************************/


  DATA neu;
  INPUT r u;
  LABEL r=´Abstand von der Rohrwand [mm]´;
  LABEL u=´Stroemungsgeschwindigkeit [m/s]´;
  CARDS;
0.1     6.808884275
0.2     7.591410092
0.3     7.974666942
0.4     8.339971019
0.5     8.401945653
0.6     8.652994524
0.7     8.716549018
0.8     8.844615329
0.9     8.941506437
1       9.137466038
1.1     9.203434537
1.2     9.302998652
1.3     9.269728939
1.4     9.369783696
1.6     9.269728939
1.7     9.302998652
1.8     9.403299267
1.9     9.470577105
2       9.64021635
2.25    9.606122918
2.5     9.64021635
2.75    9.846524818
3       9.742995316
3.25    9.881202
3.5     9.881202
4       10.12629757
4.5     10.19708557
5       10.41149267
5.5     10.66553543
6       10.62898492
7       10.77570677
8       11.07333073
9       11.03582134
10      11.33836488
12      11.5303359
14      11.56899781
16      11.60774924
18      11.84214494
20      12.15973981
22.5    12.07979515
25      12.28034268
27.5    12.40177165
30      12.36120333
32.5    12.44243214
35      12.56496789
  ;
  proc nlin method=marquardt;
  parms n=5 to 15 by .1;
  model u = 12.56496789*(r/35)**(1/n);
  der.n = -12.56496789*(n**(-2))*log(r/35)*(r/35)**(1/n);
  output out=b  p=yhat  r=yresid;
  run;

  proc plot data=b;
  plot u*r = 'a'  yhat*r='b'  yresid*r='c' / vpos=50;
  run;
```

SAS-Quellcode zur Ermittlung des Exponenten n sowie der maximalen Strömungsgeschwindigkeit in Rohrmitte im Potenzgesetz

```
/****************************************************************/
/*          S A S   Q U E L L C O D E                          */
/*                                                              */
/*    NAME: Geschwindigkeitsverteilung_GPCG_max.sas             */
/*                                                              */
/*   TITLE: Stroemungsprofil Maximalgeschwindigkeit             */
/*          Ermittlung der Naeherungsfunktion des               */
/*          Potenzgesetzes fuer n und umax                      */
/*    KEYS: NLIN                                                */
/*   PROCS: NLIN, PLOT                                          */
/*    DATE: 04.08.2000                                          */
/*     TEL: +49-171/2720032                                     */
/*   Email: u.koester@pharmazie.uni-wuerzburg.de                */
/*                                                              */
/*                (c) Ulf Koester                               */
/*                                                              */
/****************************************************************/


  DATA neu;
  INPUT r u;
  LABEL r=´Abstand von der Rohrwand [mm]´;
  LABEL u=´Stroemungsgeschwindigkeit [m/s]´;
  CARDS;
0.1     6.808884275
0.2     7.591410092
0.3     7.974666942
0.4     8.339971019
0.5     8.401945653
0.6     8.652994524
0.7     8.716549018
0.8     8.844615329
0.9     8.941506437
1       9.137466038
1.1     9.203434537
1.2     9.302998652
1.3     9.269728939
1.4     9.369783696
1.6     9.269728939
1.7     9.302998652
1.8     9.403299267
1.9     9.470577105
2       9.64021635
2.25    9.606122918
2.5     9.64021635
2.75    9.846524818
3       9.742995316
3.25    9.881202
3.5     9.881202
4       10.12629757
4.5     10.19708557
5       10.41149267
5.5     10.66553543
6       10.62898492
7       10.77570677
8       11.07333073
9       11.03582134
10      11.33836488
12      11.5303359
14      11.56899781
16      11.60774924
18      11.84214494
20      12.15973981
22.5    12.07979515
25      12.28034268
27.5    12.40177165
30      12.36120333
32.5    12.44243214
35      12.56496789
  ;
  proc nlin method=marquardt;
  parms n=6 to 12 by .1    umax=12 to 13 by .1;
  model u = umax*(r/35)**(1/n);
  der.n = -umax*(n**(-2))*log(r/35)*(r/35)**(1/n);
  der.umax = (r/35)**(1/n);
  output out=b  p=yhat  r=yresid;
  run;

  proc plot data=b;
  plot u*r = 'a'  yhat*r='b'  yresid*r='c' / vpos=50;
  run;
```

SAS-Quellcode zur Bestimmung der Kalibrierfunktion des Abluftfeuchtesensors

```
/***************************************************************/
/*          S A S   Q U E L L C O D E                          */
/*                                                             */
/*    NAME: Abluftfeuchtesensor.sas                            */
/*                                                             */
/*   TITLE: Kalibrierung Abluftfeuchtesensor                   */
/*          Abhaengigkeit von Temperatur und Feuchte           */
/*                                                             */
/*    KEYS: regression, response surface methods               */
/*   PROCS: GLM                                                */
/*    DATE: 11.02.2001                                         */
/*     TEL: +49-171/2720032                                    */
/*   Email: u.koester@pharmazie.uni-wuerzburg.de               */
/*                                                             */
/*                (c) Ulf Koester                              */
/*                                                             */
/***************************************************************/


 DATA neu;
    INPUT T H K;
    LABEL T=´Temperatur des Sensors [° C]´;
    LABEL H=´Anzeige relative Feuchte [%]´;
    LABEL K=´Korrekturfaktor [dimensionslos]´;
       CARDS;
         22        7         1.6159
         24        6         1.8847
         24.5      7         1.6154
         29        7.5       150.60
         30        7         1.6130
         37.5      7.5       1.4999
         57.5      8         1.3784
         69        9         1.2030
         19.5      50.5      1.07921
         29        51        1.01373
         37.5      49.3      0.99716
         45.5      50        0.9354
         53.5      51        0.87039
         24        31.5      1.04254
         29        32.5      1.00031
         39        31.5      1.00603
         45.5      31.3      0.99169
         54        31        0.96935
         61.5      29.5      0.98475
         21        84.6      1.00414
         28.5      83.83     1.01
         36        85        0.97435
         45        84        0.9731
         53.5      82        0.98598
         62        79        1.0138
         19        93        1.0753
       Options PS = 60 LS = 70 nocenter;
       Title1 ´-------------------------------------------------------------------´;
       Title2 ´  Korrekturfaktor Feuchte in Abhaengigkeit von T und rel. H         ´;
       Title3 ´                                                                    ´;
       Title4 ´            k = T + T² + H + H² + TH + T²H + TH² + T²H²             ´;
       Title5 ´-------------------------------------------------------------------´;
       Proc print;
 run;
 Proc GLM Data = neu;
    Model k = T T*T H H*H T*H T*T*H T*H*H T*T*H*H;
    output out = res p = predict r = resid;
    Proc print Data = res; Var T H k predict resid;
 run;
```

Turbo Pascal -Quellcode zur Messwerterfassung des akustischen Feuchtesensors

```
PROGRAM Sensor_Init_GHA; { Initialisierung Sensorelektronik GHA }
                         { Update 23.07.1998 A. Stofleth        }
                         { Modified 17.07.2001 by U. Köster     }

{$G+}                    { 286-Code                             }
{$N-}                    { No Numeric Processor                 }
{$R+}                    { Range check on                       }
{$B+}                    { Boolean complete evaluation on       }
{$S+}                    { Stack checking on                    }
{$I+}                    { I/O checking on                      }

USES  Dos,TpCrt,TpEdit,Async;

CONST ComPort       : BYTE  = 1;        { Nr. der Schnittstelle }

VAR   Zeichen                             : CHAR;

      Escaped                             : BOOLEAN;

      Taste                               : WORD;

      Str_f1, Str_f2, StrFrage            : STRING;

      Num_f1,Num_f2, Error, Code1, Code2  : INTEGER;

      Zeitzaehler                         : LONGINT;
```

```
      f                                       : TEXT;

      Feuchtegehalt, Mittelwert_feuchtegehalt : REAL;


{---------------------------------------------------------------------------}

PROCEDURE InitCom;

CONST Baudrate : LONGINT = 9600;
      DataBits : BYTE    = 8;
      Parity   : CHAR    = 'N';
      StopBits : BYTE    = 1;

BEGIN
  IF OpenCom(ComPort,256,256) THEN
  BEGIN
    ComParams(Comport,Baudrate,DataBits,Parity,StopBits);

    SetRTSMode(ComPort,TRUE,1,1);
    SetCTSMode(ComPort,TRUE);

    ClearCom(ComPort,'B');

  END ELSE BEGIN
           WRITELN('Error #01: COM-Port ',ComPort,' not opened',#7);
           HALT(1);
           END;
END;

{---------------------------------------------------------------------------}

PROCEDURE WriteCom(Data : STRING);
BEGIN
  ComWrite(ComPort,Data);
  ComWaitForClear(ComPort);
End;

{---------------------------------------------------------------------------}

PROCEDURE ReadCom;

BEGIN
  Zeichen := ComReadChW(ComPort);
END;

{------------------------------Hauptprogramm-------------------------------}

BEGIN
  TEXTBACKGROUND(0);
  CLRSCR;
  HiddenCursor;
  Escaped  := FALSE;
  TextAttr := $07;
  GOTOXY(15,2);   WRITE('Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH)');
  GOTOXY(15,4);   WRITE('Pharmazeutische Technologie Universität Würzburg');
  GOTOXY(15,10);  WRITE('Messwerterfassung für akustischen Feuchtesensor');
  GOTOXY(15,16);  WRITE('Messwerte werden in die Datei ');
  TextAttr := $0F;
                  WRITE('a:\AKUST_FS.DAT');
  TextAttr := $07;
  GOTOXY(15,17);  WRITE('auf Diskette geschrieben.');
  GOTOXY(15,19);  WRITE('Bitte geben Sie den Titel des Versuchs ein: ');
  GOTOXY(15,21);  WRITE('.........................................');
  TextAttr := $0F;
  GOTOXY(15,21);  READLN(Strfrage);
  TextAttr := $07;
  GOTOXY(15,26);  WRITE('Bitte an der Sensorelektronik Periodenzahl 200 anwöhlen');

  InitCom;                                             {Schnittstelle öffnen}
  ASSIGN(f,'a:\AKUST_FS.DAT');                         {Datei verbinden    }
  REWRITE(f);                                          {Erzeugen der Datei }
  WRITELN(f,'Zeit [s];Feuchtegehalt [g/kg];Temperatur akustischer Feuchtesensor [°C];', Strfrage); {Spal-
tenüberschrift }
  zeitzaehler := 0;                                    {Zeitzähler starten }
  TextAttr := $8F;
  GOTOXY(15,30); WRITE('Start der Aufzeichnung mit beliebiger Taste...');
  TextAttr := $07;
  REPEAT UNTIL KEYPRESSED;

  Zeichen :=READKEY;
  WRITE(^G);
  CLRSCR;
  GOTOXY(15,10); WRITE('Aufzeichnung der Messwerte in 5 Sekunden Takten');
  GOTOXY(15,12); WRITE('in die Datei a:\AKUST_FS.DAT');
  TextAttr := $8F;
  GOTOXY(15,45); WRITE('Ende der Aufzeichnung mit beliebiger Taste...');
  TextAttr := $07;



  REPEAT
        REPEAT
        Str_f1 := '';               { Strings löschen               }
        Str_f2 := '';
        WriteCom(CHR($11));         { Befehl zur Messwertübertragung}

              REPEAT
              ReadCom;
              { Null-Terminator unterdrücken }
              IF NOT(Zeichen = #0) THEN Str_f1 := Str_f1+Zeichen;
              UNTIL Zeichen = #0;

              REPEAT
              ReadCom;
              { Null-Terminator unterdrücken }
              IF NOT(Zeichen = #0) THEN Str_f2 := Str_f2+Zeichen;
              UNTIL Zeichen = #0;

        VAL(Str_f1,Num_f1,Code1);       {String -> Integer}
```

```
        VAL(Str_f2,Num_f2,Code2);
        IF Code1 = 1 THEN BEGIN Num_f1 := 0; Num_f2 := 0; END;

        Feuchtegehalt :=Num_f1/(1-(Num_f1/1000));

        TextAttr := $0F;
        GOTOXY(15,25); WRITE('Aktuelle Messwerte');
        GOTOXY(15,28); WRITE('Zeit [s]...........................: ',zeitzaehler DIV 10);
        GOTOXY(15,30); WRITE('Spezifische Luftfeuchtigkeit [g/kg]: ',Num_f1:4);
        GOTOXY(15,32); WRITE('Feuchtegehalt [g/kg]...............: ',feuchtegehalt:2:3);
        GOTOXY(15,34); WRITE('Temperatur [°C]....................: ',Num_f2:4);
        TextAttr:= $07;
        DELAY(163);                    {kalibriert => 0,1 Sekunde warten}
        zeitzaehler := zeitzaehler + 1;
        Mittelwert_feuchtegehalt :=mittelwert_feuchtegehalt + feuchtegehalt;
        UNTIL zeitzaehler MOD 50 = 0;

  mittelwert_feuchtegehalt :=mittelwert_feuchtegehalt/50;
  GOTOXY(15,40); WRITE('Mittelwert Feuchtegehalt: ',mittelwert_feuchtegehalt:2:3);
  WRITELN(f,zeitzaehler DIV 10, ';', Mittelwert_feuchtegehalt:2:3,';',Num_f2:4);  {in Datei schreiben}
  Mittelwert_feuchtegehalt :=0;
  UNTIL KeyPressed;
  WRITE(^G);

  TextAttr := $07;
  CloseCom(ComPort);

  CLOSE(f);              {Datei schließen und speichern  }

  NormalCursor;
END.
```

Turbo Pascal -Quellcode zur Berechnung der kritischen Sprührate

```
program KRIT_SPR;

{--------------------------------------------------------------------------}
{              Berechnung der kritischen Sprührate                         }
{                                                                          }
{         Pharmazeutische Technologie Universität Würzburg                 }
{                                                                          }
{             (c) Ulf Köster       27. September 2001                      }
{--------------------------------------------------------------------------}

USES TpCrt;

const
  rh_a = 100;     {Relative Feuchte der Abluft}


var tff     {Temperatur Frischluftfeuchtefühler},
   rh_f    {Relative Feuchte der Frischluft},
   pf      {Absolutdruck der Frischluft},
   pa      {Absolutdruck der Abluft},
   vs      {Frischluft-Volumenstrom},
   chi_f   {Feuchtegehalt Frischluft},
   roh_f   {Dichte der Frischluft},
   mwin    {Massenstrom Wasser in},
   rh_z    {Relative Feuchte der Zuluft},
   tz      {Temperatur der Zuluft},
   h       {Spezifische Enthalpie feuchter Luft},
   ta      {Ablufttemperatur},
   residuum {Fehlerschranke},
   chi_a   {Feuchtegehalt Abluft},
   roh_a   {Dichte der Abluft},
   mwa     {Massenstrom Wasser out},
   mtl     {Massenstrom trockener Luft}          : REAL;



{---- Berechnung des Dampfdruckes von Wasser für die Celsiustemperatur ----}
function PD(t:REAL): Real;

BEGIN
PD:=610.78*exp(17.08085*t/(234.175+t));
END;



{---- Hauptprogramm -------------------------------------------------------}
BEGIN
CLRSCR;
TEXTATTR := $0F;
GOTOXY(5,1);  WRITE('           Berechnung der kritischen Sprührate');
TEXTATTR := $07;
GOTOXY(5,2);  WRITE('       Pharmazeutische Technologie Universität Würzburg');
GOTOXY(5,3);  WRITE('               (c) Ulf Köster    27.08.2001');

GOTOXY(5,5);  WRITE('Temperatur am Frischluftfeuchtefühler [°C].: '); READLN(tff);
GOTOXY(5,6);  WRITE('Relative Feuchte [%].......................: '); READLN(rh_f);
GOTOXY(5,7);  WRITE('Absolutdruck Frischluft [Pa]...............: '); READLN(pf);
GOTOXY(5,8);  WRITE('Frischluft Volumenstrom [m³/h].............: '); READLN(VS);
GOTOXY(5,9);  WRITE('Temperatur der Zuluft [°C].................: '); READLN(tz);
GOTOXY(5,10); WRITE('Absolutdruck Abluft [Pa]...................: '); READLN(pa);

chi_f := 622*rh_f/100*PD(tff)/(pf-rh_f/100*PD(tff));

roh_f := pf/287.06/(273.15+tff)*(1-0.3779*rh_f/100*PD(tff)/pf);
```

```
mwin := roh_f*vs/(1+1000/chi_f)*1000/60;

mtl := roh_f*vs*1000/60 - mwin;

GOTOXY(5,12); WRITE('Feuchtegehalt der Frischluft...............: ', chi_f:2:2, ' g/kg');
GOTOXY(5,13); WRITE('Dichte der Frischluft......................: ', roh_f:2:4, ' kg/mü');
GOTOXY(5,14); WRITE('Massenstrom Wasser ein.....................: ', mwin:2:4, ' g/min');
GOTOXY(5,15); WRITE('Massenstrom trockener Luft.................: ', mtl:2:2, ' g/min');

rh_z := chi_f*pf/(0.622+chi_f)/PD(tz);

h := 1.005*tz+chi_f/1000*(2491+1.93*tz);

GOTOXY(5,17); WRITE('Relative Feuchte der Zuluft................: ', rh_z:2:2, ' %');
GOTOXY(5,18); WRITE('Spezifische Enthalpie der Zuluft...........: ', h:2:2, ' kJ/kg');

ta := 0;
  REPEAT
  residuum := (h-2491*0.622*PD(ta)/(pa-PD(ta)))/(1.005+1.93*0.622*PD(ta)/(pa-PD(ta)))-ta;
  ta := ta + 0.01;
  UNTIL residuum < 0;

chi_a := 622*rh_a/100*PD(ta)/(pa-rh_a/100*PD(ta));

roh_a := pa/287.06/(273.15+ta)*(1-0.3779*rh_a/100*PD(ta)/pa);

mwa := chi_a*mtl/1000;

GOTOXY(5,20); WRITE('Ablufttemperatur...........................: ', ta:2:2, ' øC');
GOTOXY(5,21); WRITE('Relative Feuchte der Abluft................: ', rh_a:2, ' %');
GOTOXY(5,22); WRITE('Feuchtegehalt der Abluft...................: ', chi_a:2:2, ' g/kg');
GOTOXY(5,23); WRITE('Dichte der Abluft..........................: ', roh_a:2:4, ' kg/mü');
GOTOXY(5,24); WRITE('Massenstrom Wasser aus.....................: ', mwa:2:4, ' g/min');
TEXTATTR := $0F;
GOTOXY(5,25); WRITE('Kritische Sprührate........................: ', mwa-mwin:2:2, ' g/min');

READLN;
END.
```

PUBLIKATIONEN

Ein Teil der Ergebnisse, die aus dieser Arbeit hervorgingen, wurden bereits veröffentlicht.

U. Köster, I. Zimmermann, *Mass Balance of an aqueous fluidized bed granulation process*, PARTEC 2001, International Congress for Particle Technology, Nuernberg, Germany, 27^{th} – 29^{th} March 2001

LEBENSLAUF

Name	Köster , Ulf
Geburtstag	19. Februar 1972
Geburtsort	Kassel
Religion	evangelisch
Familienstand	ledig
Eltern	Horst-Dietrich Köster, Oberstudienrat a.D. Doris Köster, geb. Weinmann, Fachlehrerin
Schulbesuch	4 Jahre Grundschule in Melsungen 2 Jahre Förderstufe in Melsungen 4 Jahre gymnasialer Zweig der Gesamtschule Melsungen 3 Jahre Oberstufengymnasium Melsungen
Berufsausbildung	2 Jahre Ausbildung zum Reserveoffizier Panzertruppe 6 Monate Pharmaziestudent (PJ) bei Beiersdorf-Lilly GmbH Hamburg 6 Monate Pharmaziestudent (PJ) in der Friesen Apotheke Westerland
Universitäre Ausbildung	8 Semester Studium der Pharmazie an der Bayerischen Julius-Maximilians-Universität Würzburg 6 Semester Promotionsstudium am Lehrstuhl für Pharmazeutische Technologie der Bayerischen Julius-Maximilians-Universität Würzburg unter Leitung von Prof. Dr. I. Zimmermann
Abschlüsse	Abitur 1991 Offizierprüfungen KTS 2 Munster/OSH Hannover 1993 1. pharmazeutisches Staatsexamen 1995 2. pharmazeutisches Staatsexamen 1997 3. pharmazeutisches Staatsexamen 1998 Approbation als Apotheker 2000
Praktika	Friesen-Apotheke Westerland/Sylt Beiersdorff-Lilly GmbH Hamburg B. Braun Melsungen AG Krankenhausapotheke Uniklinikum Würzburg Arbeitskreis Prof. Dr. C. Müller Universität Würzburg Rosenapotheke Melsungen St. Laurentius Apotheke Zell am Main Tänning Apotheke Würzburg Führungsakademie der Bundeswehr Hamburg PzBtl 64 Wolfhagen PzGrenBrig 5 Neustadt PzBrig 36 Veitshöchheim Heeresführungskommando Koblenz NATO-Verwendungen
Stipendium	Studienstiftung des Deutschen Volkes (1993 bis 1998)

11 LITERATURVERZEICHNIS

[1] I. Zimmermann, *Pharmazeutische Technologie*, 1, 389 (1998)

[2] H. Schubert, *Grundlagen des Agglomerierens*, Chemie Ingenieur Technik, 51(4), 266-277 (1979)

[3] J. Beránek, K. Rose, G. Winterstein, *Grundlagen der Wirbelschichttechnik*, 5, 26 (1975)

[4] D.E.Wurster; *Air-suspension technique of coating drug particles – a preliminary report*, J. Am. Pharm. Ass., Sci. Ed. v. 48(8), 451-456 (1959)

[5] M. Scott, H. Lieberman, A. Rankell et al; *Drying as a Unit Operation in the Pharmaceutical Industry*, J. Pharm. Sci 52, 284-291 (1963)

[6] N. El-Gindy, M. Samaha, H. Maradny; *The mixing performance of the fluidized-bed for a multicomponent system*, Pharm. Ind. 48, 403-407 (1986)

[7] M. Scott et al; *Continous production of tablet granulations in a fluidized bed I*, J. Pharm. Sci. 53, 314-324 (1964)

[8] A. Metha, K. Adams, M. Zoglio; *Evaluation of fluid-bed processes for enteric coating systems*, Pharm. technol. 10, 46-56 (1986)

[9] M. Stieß, *Mechanische Verfahrenstechnik*, 2, 346 – 348 (1994)

[10] M.A. Gilbertson, J.G. Yates, *The tilting fluidized bed: a re-examination*, Powder technology, 89, 29-36 (1996)

[11] M. Stieß, *Mechanische Verfahrenstechnik*, 2, 344 (1994)

[12] W. Külling, E. Simon, *Fluid-bed technology applied to pharmaceuticals*, Pharmaceutical technology, 79 – 83 (1980)

[13] S. Contini, K. Atasoy, *Fluid bed granulation*, Drugs made in Germay, 9 138 – 142 (1966)

[14] H. G. Kristensen, T. Schaefer, *Granulation – A review on pharmaceutical wet-granulation*, Drug development and industrial pharmacy, 13(4 + 5), 803 – 872 (1987)

[15] A. R. Gupte, *Das Granulieren in der Wirbelschicht*, Pharmazeutische Industrie 35, 17-20 (1973)

[16] U. Thurn, *Mischen, Granulieren und Trocknen pharmazeutischer Grundstoffe in heterogenen Wirbelschichten*, Dissertation ETH Zürich, 23-48 (1970)

[17] S. Watano, *Continuous monitoring and mechanism of electrostatic charge of powder in fluidized bed process*, Chem. Pharm. Bull. 46, 1438-1443 (1998)

[18] Z. Ormós, K. Pataki, B. Csukas, *Studies on granulation in a fluidized bed: III. Calculation of the feed rate of granulating liquid*, Hungarian journal of industrial chemistry 1, 463 – 474 (1973)

[19] T. Abberger, *Definition und Bedeutung der freien Feuchte bei der Wirbelschichtgranulierung*, Dissertation Universität Innsbruck, 25 (1996)

[20] H. Rumpf, *Grundlagen und Methoden des Granulierens*, Chemie Ingenieur Technik, 30, 144 – 158 (1958)

[21] H. Schubert, *Kapillardruck und Zugfestigkeit von feuchten Haufwerken aus körnigen Stoffen*, Chemie Ingenieur Technik, 45, 396 - 401 (1973)

[22] C. Appelgren, *Recent advances in granulation technology and equipment*, Drug development and industrial pharmacy, 11(26), 725 – 741 (1985)

[23] M. Gilbertson, J. Yates, *The tilting fluidized bed: a re-examination*, Powder technology 89, 29 – 36 (1996)

[24] P. B. Linkson, J.R. Glastonbury, G.J. Duffy, *The mechanism of granule growth in wet pelletising*, Trans. Instn. Chem. Engrs. 51, 251-259 (1973)

[25] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation*, Arch. Pharm. Chemi, 6, 69 – 82 (1978)

[26] R. D. Becher, *Untersuchung der Agglomeration von Partikeln bei der Wirbelschicht-Sprühgranulation*, Fortschrittberichte VDI Reihe 3: Verfahrenstechnik Nr. 500 (1997)

[27] Y. Funakoshi, M. Yamamoto, Y. Matsumura, *A novel agglomeration granulation system utilizing a centrifugal-fluidizing drive*, Powder technology 27, 13 – 21 (1980)

[28] Z. Ormós, K. Pataki, B. Csukas, *Studies on granulation in a fluidised bed III. Calculation of the feed rate of granulating liquid*, Hungarian journal of industrial chemistry, 1, 463 – 474 (1973)

[29] H. Stahl, *Feuchtigkeit und Trocknen in der pharmazeutischen Technologie*, 132 (1980)

[30] F. Thurner, S. Maul, *Bestimmung der Trocknungsverlaufskurve lösungsmittelfeuchter Güter durch kontinuierliche Messung der Abluftzusammensetzung*, VT-Verfahrenstechnik 17, 585 – 592 (1983)

[31] H. Stricker, *Physikalische Pharmazie*, 504 (1987)

[32] M. W. Scott et al., *Drying as unit operation in the pharmaceutical industry I*, Journal of Pharmaceutical Sciences 52, 286 (1963)

[33] H. Sucker, P. Fuchs, P. Speiser, *Pharmazeutische Technologie*, 2, 417 (1991)

[34] Firma Dr. Wernecke & Partner Potsdam, *Homepage* http://www.dr-wernecke.de (2000)

[35] A. Schade, *Herstellung von pharmazeutischen Granulaten in einem kombinierten Feuchtgranulations- und Mehrkammer-Wirbelschichttrocknungs-Verfahren*, Dissertation Universität Basel, 29 (1992)

[36] V. Vanecek, M. Markvart, *The drying of granular solids in a fluidized bed*, Fluidized bed drying, 69 – 81 (1966)

[37] J. Carstensen, *Solid pharmaceuticals: mechanical properties and rate phenomena*, 147 – 149, (1980)

[38] V. Vanecek, M. Markvart, *Fluidized bed drying*, 33 – 81 (1966)

[39] P. H. Stahl, *Feuchtigkeit und Trocknen in der pharmazeutischen Technologie*, 133 – 135 (1980)

[40] O. Krischer W. Kast, *Trocknungstechnik* 1, 287-292 (1978)

[41] H. Stahl, *Trocknung pharmazeutischer Granulate in Eintopfsystemen*, Pharmazeutische Industrie, 61, 656 – 661 (1999)

[42] U. Kopp, *Automatische Wirbelschichttrocknung pharmazeutischer Granulate*, Dissertation Universität Basel (1987)

[43] P. Stahl, *The econdry method – equilibration as a new principle for controlling the batch drying process*, Die Pharmazeutische Industrie, 38(6), 566 – 571 (1976)

[44] K. Steffens, K. List, *Supervising and controlling of granulation processes by near-infrared spectroscopy*, Die Pharmazeutische Industrie, 58(4), 347 – 353 (1996)

[45] P. Frake et al, *Process control and end-point determination of a fluid bed granulation by application of near infrared spectroscopy*, International journal of pharmaceutics, 151(1), 75 – 80 (1997)

[46] D. Jones, *Factors to consider in fluid-bed processing*, Pharmaceutical technology, 9(4), 50 – 62 (1985)

[47] S. Flögel, *Die Wirbelschichtgranulierung nach dem Gleichstromverfahren in der Pharmazeutischen Technologie*, Dissertation Universität Innsbruck (1997)

[48] D. E. Wurster, *Air-suspension technique of coating drug particles – a preliminary report*, J. Am. Pharm. Ass. Sci, 48(8), 451-456 (1959)

[49] K.-F. Jäger, *Aufbauagglomeration pharmazeutischer Granulate nach dem Rotor-WSG-Verfahren unter besonderer Berücksichtigung der Bindemittelwirkung von Polyvinylpyrrolidonen*, Dissertation, 23 (1983)

[50] Firma Hüttlin GmbH Lörrach, *Firmenbroschüre Unilab* (2001)

[51] Firma INNOJET Technologies Lörrach, *Firmenbroschüre* (2001)

[52] B. Luy, *Vakuum-Wirbelschicht - Grundlagen und Anwendungen in der pharmazeutischen Technologie*, Dissertation, (1991)

[53] F. Yanze, C. Duru, M. Jacob, *A process to produce effervescent tablets: fluidized bed dryer melt granulation*, Drug development and industrial pharmacy, 26(11), 1167- 1176 (2000)

[54] W. A. Ritschel, *Allgemeine Verfahrenslehre und mechanische Verfahrenstechnik für die Fabrikation von Arzneimitteln*, Pharmazeutische Industrie 33, 685-687 (1971)

[55] M. Doelling, R. Nash, *The development of a microwave fluid-bed processor. II. Drying performance and physical characteristics of typical pharmaceutical granulations*, Pharmaceutical research, 9(11) 1493 – 1501 (1992)

[56] M. Scott, H. Lieberman, A. Rankell, J. Battista, *Continuous production of tablet granulations in a fluidized bed I*, Journal of pharmaceutical sciences, 53(3), 314 – 320 (1964)

[57] Z. Ormós, B. Csukás, *Investigations on continuous fluidized bed granulation*, V. International Congress of Chemical Engineering, Chemical Equipent Design and Automation (1975)

[58] T. Köblitz, L. Ehrhardt, *Continuous variable-frequency fluid-bed drying of pharmaceutical granulations,* Pharmaceutical Technology, 62 – 81 (1985)

[59] M. Ulrich, *Kontinuierlich in die Wirbelschicht*, Chemie Anlagen Verfahren, 28(11), 34 (1995)

[60] A. Schade, *Herstellung von pharmazeutischen Granulaten in einem kombinierten Feuchtgranulations- und Mehrkammer-Wirbelschichttrocknungsverfahren*, Dissertation Universität Basel (1992)

[61] A. Gottschalk, *A process for continuous production of spherical granules with high density*, Powder handling & processing (1993)

[62] M. E. Aulton, M. Banks, *Fluidized bed granulation- factors influencing the quality of the product*, International Journal of Pharmaceutical Technology and Product Manufacture 2, 24-29 (1981)

[63] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation: III. Effects of inlet air temperature and liquid flow rate on granule size and size distribution. Control of moisture content of granules in the drying phase*, Archiv for pharmacy og chemi, 6, 1 – 13 (1978)

[64] G. Shlieout, *Theorie und Praxis der Granulierung*, APV News 1, 6 – 7 (2000)

[65] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation: I. Effects of spray angle, nozzle height and starting materials on granule size and size distribution*, Archiv for pharmacy og chemi, 5, 51 – 60 (1977)

[66] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation: II. Estimation of droplet size of atomized binder solutions*, Archiv for pharmacy og chemi, 5, 178 - 193 (1977)

[67] L. Juslin, J. Yliruusi, *The effect of raw material and atomising air pressure on the properties of granules prepared in a fluidised bed granulator*, S.T.P. Pharma Sciences, 6(5), 328 – 334 (1996)

[68] P. Merkku, J. Yliruusi, L. Hellén, E. Kristoffersson, *Studying the effects of three important process variables in fluidised bed granulation using* 2^3 *factorial design*, Acta Pharmaceutica Fennica, 101, 181 – 187 (1992)

[69] S. Schaafsma et al., *Effects and control of humidity and particle mixing in fluid-bed granulation*, AIChE Journal, 45(6), 1202 – 1210 (1999)

[70] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation: IV. Effects of binder solution and atomisation on granule size and size distribution*, Archiv for pharmacy og chemi, 6, 14 - 25 (1978)

[71] T. Schæfer, O. Wørts, *Control of fluidized bed granulation: V. Factors affecting granule growth*, Archiv for pharmacy og chemi, 6, 69 - 82 (1978)

[72] A. Gupte, *Das Granulieren in der Wirbelschicht*, Pharmazeutische Industrie, 35(1) 17 – 20 (1973)

[73] Firma Arizona Instrument Tempe Arizona USA, *Homepage Computrac CT 3000* www.azic.com (2000)

[74] A. Burger, *Hunnius Pharmazeutisches Wörterbuch* 7. Auflage, 422 (1993)

[75] O. Mandal, *Erstellung und Validierung einer kombinierten NIR/Raman-Bibliothek zur Identitätskontrolle organischer und anorganischer Substanzen*, Dissertation Universität-Gesamthochschule Duisburg, 4 (1999)

[76] J. Rantanen, J. Yliruusi et a., *On-line monitoring of moisture content in an instrumented fluidized bed granulator with a multi-channel NIR moisture sensor*, Powder Technology 99, 163 – 170 (1998)

[77] C. Döscher, W. Gählert, *Die Mikrowellen-Resonatortechnik – Ein neues Prinzip der Feuchtemessung für die Zuckerindustrie*, Zuckerindustrie 119 (1994)

[78] Berthold Technologies, *Produktbeschreibung Feuchtemessung Micro-Moist LB 356* (2001)

[79] C. Döscher, R. Herrmann, *Die Mikrowellen-Resonatortechnik – Ein neues Prinzip der Feuchtemessung in Schüttgütern*, LVT Fachzeitschrift für Lebensmittel- und Verpackungstechnik, 2 (1997)

[80] Franz Ludwig Gesellschaft für Mess- und Regeltechnik mbH *Firmenbroschüre* (2001)

[81] Y. Funakoshi, M. Yamamoto et al., *A novel agglomeration granulating system utilizing a centrifugal-fluidizing drive*, Powder Technology, 27, 13 – 21 (1980)

[82] Berthold Technologies, *Produktbeschreibung Feuchtemessgerät LB 350* (2001)

[83] C. Waller, *Klimamessung - Unterrichtseinheit an der Universität für Angewandte Kunst*, www.cwaller.de/klimames.htm (1999)

[84] K. Schaber, *Skriptum Technische Thermodynamik für Chemieingenieure und Verfahrenstechniker*, 239 (2000)

85 P. H. Stahl, *Feuchtigkeit und Trocknen in der pharmazeutischen Technologie*, 6 (1980)

86 W. Lück, *Feuchtigkeit – Grundlagen Messen Regeln*, 33 – 43 (1964)

87 J. Dohmann, FH Lippe, *Persönliche Mitteilung*, Lemgo (23.03.2001)

88 Firma G. Lufft Mess- und Regeltechnik GmbH Fellbach, *Homepage* http://www.lufft.de (2000)

89 Zentrum für Interdisziplinäre Technikforschung (ZIT), *Skriptum zum Wasserkreislauf* http://www.zit.tu-darmstadt.de/lehre/umweltwissenschaften/wasserkreislauf/kap03.html (2001)

90 Firma HYGROCONTROL GmbH, Hanau, Deutschland, *Firmenpublikation Feuchtemesstechnik* (1996)

91 A. Haberstroh, Firma HYGROCONTROL GmbH, Hanau, *Persönliche Mitteilung* (4.9.2001)

92 K. Borho, *Feuchtigkeitsmessung und Steuerung der Produktfeuchte bei Trocknungsprozessen*, In-Prozess-Kontrolle fester Arzneiformen APV-Seminar Darmstadt 63 – 80 (1990)

93 E. Schlünder et al, *Experimentelle Bestimmung der Trocknungsgeschwindigkeit von durchströmten Haufwerken durch die kontinuierliche Messung der Abluftfeuchte*, Verfahrenstechnik, 10, 766-769 (1976)

94 L. Zipser, HTW Dresden, *Persönliche Mitteilung* (20.03.2001)

95 Zentrum für angewandte Forschung und Technologie an der Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH), *Homepage* www.htw-dresden.de (2001)

96 L. Zipser, F. Wächter, H. Franke, *Acoustic gas sensors using airborne sound properties*, Sensors and Actuators B 68, 162 – 167 (2000)

97 W. Bohl, *Technische Strömungslehre* 8. Auflage 239-246 (1989)

98 Firma Höntzsch Instruments GmbH Waiblingen, *Informationsbroschüre Flügelrad-Strömungssensoren FA*, 2 (1998)

99 M. Stieß, *Mechanische Verfahrenstechnik 1*, 2, 251 (1995)

100 R. Fretz, *Anforderungen an moderne Sensoren für den Einsatz in der pharmazeutischen Verfahrenstechnik*, In-Prozess-Kontrolle fester Arzneiformen APV-Seminar 1988, 37 – 44 (1990)

101 Firma KRITEC Ebersburg, *Homepage* www.kritec.de (2001)

102 Herr Schönknecht, Firma Thermocoax Hamburg, *Persönliche Mitteilung*, (28.6.2001)

103 S. Heinrich, L. Mörl, *Temperatur- und Konzentrationsverteilung bei der Wirbelschichtsprühgranulation*, Chemie Ingenieur Technik 70, 976 – 979 (1998)

104 M. Trojosky, *Modellierung des Stoff- und Wärmetransports in flüssigkeitsbedüsten Gas/Feststoff-Wirbelschichten*, Dissertation Technische Universität Magdeburg (1991)

105 W. Carius, P. Schmidt, *In-Prozess-Feuchtemessung in der Wirbelschicht 1. Mitteilung: Eine Untersuchung mit verschiedenen Messmethoden*, Pharmazeutische Industrie, 58 Nr. 11 970 – 973 (1992)

106 P. Merku, J. Yliruusi, A. Kaukonen, L. Hellén, E. Kristoffersson, *The use of an automated fluidized bed granulator in pharmaceutical process research*, 11th Pharmaceutical technology conference, Manchester (1992)

107 S. Watano, H. Takashima, Y. Sato, T. Yasutomo, K. Miyanami, *Measurement of moisture content by IR sensor in fluidized bed granulation. Effects of operating variables on the rela-*

tionship between granule moisture content and absorbance of IR spectra, Chemical pharmaceutical bulletin, 44(6), 1267 – 1269 (1996)

[108] U. Kopp, H. Sucker, *Automatische Wirbelschichttrocknung pharmazeutischer Granulate*, Pharmazeutische Industrie 55 (1), 74 – 78 (1993)

[109] S. Watano, K. Miyanami, *Image processing for on-line monitoring of granule size distribution and shape in fluidized bed granulation*, Powder technology, 83, 55 – 60 (1995)

[110] P. Merkku, J. Yliruusi, L. Hellén, *Testing of an automated laboratory scale fluidised bed granulator using different bed loads*, Acta Pharmaceutica Fennica, 101, 173 – 180 (1992)

[111] J. Werther, *Measurement techniques in fluidized beds*, Powder technology, 102, 15 – 36 (1999)

[112] R. A. Mugele, H. D. Evans, *Droplet size distribution in sprays*, Industrial and engineering chemistry, 43(6), 1317 – 1324 (1951)

[113] K. Y. Kim, W. R. Marshall Jr., *Drop-size distributions from pneumatic atomizers*, AIChE Journal, 17(3), 575 – 584 (1971)

[114] P. Grassmann, *Physikalische Grundlagen der Verfahrenstechnik*, 3 688 (1983)

[115] L. Juslin, J. Yiruusi et al., *Droplet size measurement : I. Effect of three independent variables on droplet size distribution and spray angle from a pneumatic nozzle*, International journal of pharmaceutics, 123, 247 – 256 (1995)

[116] Teubner, Firma Glatt GmbH Binzen, *Persönliche Mitteilung* (28.07.2000)

[117] Firma Munters GmhH Hamburg, *Homepage* www.munters.de (2000)

[118] Firma Munters GmbH Hamburg, *Produktprogramm Luftentfeuchter* (2001)

[119] S. Watano, T. Fukushima, K. Miyanami, *Heat transfer and granule growth rate in fluidized bed granulation*, Chemical pharmaceutical bulletin, 44(3), 572 – 576 (1996)

[120] A. Hlinak, A. Saleki-Gerhardt, *An evaluation of fluid bed drying of aqueous granulations*, Pharmaceutical development and technology, 5(1), 11 – 17 (2000)

[121] O. Molerus, *Fluid-Feststoff-Strömungen*, 9 – 11 + 57 – 67 (1982)

[122] M. Stieß, *Mechanische Verfahrenstechnik* 2, 348 – 355 (1994)

[123] B. Waldie, D. Wilkinson, L. Zachra, *Kinetics and mechanisms of growth in batch and continuous fluidized bed granulation*, Chemical Engineering Science, 42(4), 653 – 665 (1987)

[124] S. Watano, M. Uchigami, K. Miyanami, T. Yasutomo, *Modeling of agitation fluidized bed granulation by random coalescence model*, Chemical pharmaceutical bulletin, 44(7), 1357 – 1360 (1996)

[125] S. Watano, Y. Sato, K. Miyanami, *Application of fuzzy logic to moisture control in fluidized bed granulation*, Journal of Chemical Engineering of Japan, 28(3), 282 - 287 (1995)

[126] E.Murtoniemi, J.Yliruusi, P.Kinnunen, P.Merkku, K.Leiviskä, *The advantages by the use of neural networks in modelling the fluidized bed granulation process*, International journal of pharmaceutics 108, 155-164 (1994)

[127] J. Kesavan, G. Peck, *Pharmaceutical granulation and tablet formulation using neural networks*, Pharmaceutical development and technology, 1(4), 391 – 404 (1996)

[128] G. Imanidis, *Untersuchungen über die Agglomerierkinetik und die elektrische Leistungsaufnahme beim Granulierprozess im Schnellmischer*, Dissertation Universität Basel (1986)

[129] I. Zimmermann, Universität Würzburg, *Persönliche Mitteilung* (02.12.1999)

[130] Firma Meggle GmbH Wasserburg, *Datenblatt zu Lactose Monohydrat* (2001)

[131] U. Sindel, *Dissertation*, Universität Würzburg (1998)

[132] Firma ISP Technologies INC Wayne USA, *Homepage* http://ecom.ispcorp.com (2001)

[133] A. Wade P. Weller, *Handbook of pharmaceutical excipients*, 2, 392-399 (1994)

[134] V. Bühler, *Kollidon Polyvinylpyrrolidone for the pharmaceutical industry*, 2, 136 (1993)

[135] Firma Retsch GmbH & Co KG Haan, *Homepage* http://www.retsch.de (2001)

[136] Firma Retsch GmbH & Co KG Haan, *Produktbroschüre Analysensiebe*, (2001)

[137] I. Zimmermann, *Möglichkeiten und Grenzen von Streulichtverfahren*, Chemie Ingenieur Technik 68, 422 – 425 (1996)

[138] K.-H. Bauer, *Entwicklung fester peroraler Arzneiformen mit teilchengrößenkontrollierter Arzneistofffreisetzung*, Dissertation Universität Würzburg, 16 (1995)

[139] F. Bruchhausen, S. Ebel, P. Surmann, J. Bertram, *Hagers Handbuch Band 2 Methoden*, 5., 302 – 303 (1991)

[140] Firma Coulter Electronics GmbH Krefeld, *Handbuch der COULTER® LS-Serie* (1997)

[141] Firma Metrohm AG Herisau, *Gebrauchsanweisung KF-Titrino 701*

[142] H. Sucker, *Test methodes for granulates*, Pharm. Ind. 44, 312-316 (1982)

[143] K.-F. Jäger, *Aufbauagglomeration pharmazeutischer Granulate nach dem Rotor-WSG-Verfahren unter besonderer Berücksichtigung der Bindemittelwirkung von Polyvinylpyrrolidonen*, Dissertation, 165 (1983)

[144] Murtoniemi E., Yliruusi J., Kinnunen P., Merkku P., Leiviskä K., *The advantages by the use of neural networks in modelling the fluidized bed granulation process*, International journal of pharmaceutics 108, 155-164 (1994)

[145] P. Walzel, *Zerstäuben von Flüssigkeiten*, Chemie-Ingenieur-Technik, 62, 983 – 994 (1990)

[146] W. Hemming, *Verfahrenstechnik*, 5, 36 – 39 (1989)

[147] M. Zogg, *Einführung in die mechanische Verfahrenstechnik*, 3. Auflage, 89 – 90 (1993)

[148] Firma Hygrocontrol GmbH Hanau, *Datenblatt Hygromess 45* (2000)

[149] A. Haberstroh, Firma Hygrocontrol GmbH Haunau, *Persönliche Mitteilung* (21.12.2000)

[150] A. Haberstroh, Firma HYGROCONTROL GmbH, Hanau, *Persönliche Mitteilung* (4.9.2001)

[151] D. Lide, *Handbook of chemistry and physics*, 78th edition, 15-25 (1998)

[152] H. Fischer et al, *Industrielle Feuchtigkeitsmesstechnik unter Berücksichtigung höherer Temperaturen*, 98 (1990)

[153] A. Haberstroh, Firma Hygrocontrol GmbH Hanau, *Persönliche Mitteilung* (11.09.2000)

[154] A. Haberstroh, Firma Hygrocontrol GmbH Hanau, *Persönliche Mitteilung* (06.02.2001)

[155] G. Rosenbaum, R. Schölles, *Das große Buch zu Turbo Pascal 6.0*, 257- 292 (1991)

[156] GSG Geologie-Service GmbH, *Homepage* www.wuerzburger-wetter.de (2001)

[157] Hr. Gottstein, Firma Jumo Fulda, *Persönliche Mitteilung* (29.06.2001)

[158] Deutscher Wetterdienst, *Homepage* www.dwd.de (2001)

[159] Austro Control Österreichische Gesellschaft für Zivilluftfahrt mbH, *Homepage* www.austrocontrol.co.at/weather/lexfull.html (2001)

[160] Herr Steinhauser, *Persönliche Mitteilung*, Firma Höntzsch GmbH, Waiblingen (31.07.2001)

[161] Firma Höntzsch GmbH Waibingen, *Benutzerinformation zu Flügelrad-Strömungssensoren* 8 (1997)

[162] B. Luy, *Vakuum-Wirbelschicht - Grundlagen und Anwendungen in der pharmazeutischen Technologie*, Dissertation, 68 (1991)

[163] Firma Glatt GmbH Binzen, *Bedienungsanleitung GPCG* (2000)

[164] G. Zabeschek, *Experimentelle Bestimmung und analytische Beschreibung der Trocknungsgeschwindigkeit rieselfähiger, kapillarporöser Güter in der Wirbelschicht,* Dissertation TH Karlsruhe, Anhang A (1977)

[165] S. Middleman, *An introduction to fluid dynamics*, 100 – 102 (1998)

[166] B. Eck, *Technische Strömungslehre*, 8. Auflage, 1, 92 – 93 (1978)

[167] J. Zierep, *Grundzüge der Strömungslehre*, 6. Auflage, 131 (1997)

[168] W. Bohl, *Technische Strömungslehre*, 8. Auflage, 302 (1989)

[169] S. Middleman, *An introduction to fluid dynamic - principles of analysis and design*, 459 (1998)

[170] J. Zierep, K. Bühler, *Strömungsmechanik*, 83 (1991)

[171] B. Eck, *Technische Strömungslehre*, 8. Auflage, 1, 107 (1978)

[172] W. Bohl, *Technische Strömungslehre*, 8, 152 (1989)

[173] S. Mickeler, Fachhochschule Schweinfurt, *Persönliche Mitteilung* (2000)

[174] L. Prandtl, K. Oswatitsch, K. Wieghardt, *Führer durch die Strömungslehre*, 8. Auflage 206 (1984)

[175] S. Mickeler, *Persönliche Unterlagen*, FH Schweinfurt (2000)

[176] W. Bohl, *Technische Strömungslehre*, 8. Auflage, 123 (1989)

[177] W. Nitsche, *Strömungsmesstechnik*, 75 (1994)

[178] J. Zierep, *Grundzüge der Strömungslehre*, 6. Auflage, 137 (1997)

[179] FLUENT Deutschland GmbH Darmstadt, Homepage, *Theory manual to FIDAP: Turbulence modeling*, http://www.fluent.de und http://www.krist.uni-freiburg.de/fidapman/theroy/th10_03-08.htm (1999)

[180] G. Rücker, M. Neugebauer, G. Willems, *Instrumentelle pharmazeutische Analytik*, 2. Auflage 419 (1992)

[181] Firma Glatt GmbH Binzen, *Technisches Datenblatt Zweistoffdüse für die Granulation Model 970/S4* (2000)

[182] M. Nebelung, *Jahresbericht Fraunhofer-Institut für keramische Technologien und Sinterwerkstoffe* 26-27 (1997)

[183] H. Tsujimoto, T. Yokoyama, *The characterization of microgranules produced by tumbling fluidized bed granulator with opposed pulsed jet assembly*, KONA powder and particle 16, 242 – 244 (1998)

[184] Firma Malvern Instruments GmbH Herrenberg, *PS64 dry powder feeder user manual* 3, (1986)

[185] S. Hogekamp, *Über eine modifizierte Strahlagglomerationsanlage zur Herstellung schnell dispergierbarer Pulver*, Dissertation TH Karlsruhe, 34 – 36 (1997)

[186] O. Krischer, W. Kast, *Trocknungstechnik* 1, 21 (1978)

[187] I. Zimmermann, *Pharmazeutische Technologie*, 417 (1998)

[188] D. Lide, *Handbook of chemistry and physics* 78, 6-8 (1998)

[189] F. Meier Firma Glatt GmbH Binzen, *Persönliche Mitteilung* (11.8.1999)

[190] A. Wexler, *ASHRAE Fundamentals Handbook*, 5.2 (1981)

[191] H. D. Baehr, *Thermodynamik Eine Einführung in die Grundlagen und ihre technischen Anwendungen*, 208 - 217 (1996)

[192] I. Zimmermann, *Pharmazeutische Technologie*, 111 – 112 (1998)

[193] E. Glaser, P. Surmann, *Praktische Mathematik in der Pharmazie*, 221 – 222 (1981)

[194] L. Zipser, HTW Dresden, *Persönliche Mitteilung* (13.09.2001)

[195] W. F. Hemminger, H. K. Cammenga, *Methoden der Thermischen Analyse*, 187 – 193 (1989)

[196] W. Hemminger, G. Höhne, *Grundlagen der Kalorimetrie*, 99 – 109 (1979)

[197] T. Handtke, *Dissertation Universität Würzburg* (2000)

[198] F. Marco, M. Rodriguez de Rivera, *Thermogenesis: comparative study of several deconvolution methods in time-invariant calorimetry*, Thermochimica Acta, 89, 315 – 324 (1985)

[199] S. Bell et al., *Qualitative and quantitative evaluation of deconvolution for ion mobility spectrometry*, Analytica Chimica Acta, 303, 163 – 174 (1995)

[200] J. Voigt, H. Lippold, J. Krusche, *Verfahren zur dynamischen Korrektur von Messfehlern bei Polymer-Feuchtesensoren*, Patent Nr. DE 41 11 421 A1 (1992)

[201] J. Voigt, Institut für Luft- und Kältetechnik GmbH Dresden, *Persönliche Mitteilung* (2.10.2001)

[202] A. Broedel, *Process and device for improving the response of a sensor*, Patent Nr. DE 19720108 (1998)

[203] L. Juslin, J. Yliruusi, *Granule growth kinetics and attrition of granules made of different materials in a fluidized bed granulator*, S.T.P. Pharma Sciences, 6(5), 321 – 327 (1996)

[204] T. Niskanen, J. Yliruusi, *Attrition of theophylline granules during drying in a fluidized bed granulator*, Pharmzeutische Industrie, 56(3), 282 – 285 (1994)

[205] K. Schaber, *Technische Thermodynamik für Chemieingenieure und Verfahrenstechniker*, II, 245 (2000)

[206] M. Bockhorst, www.energieinfo.de/glossar (2001)

[207] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew, *Taschenbuch der Mathematik*, 18, 326 – 328 (1979)

[208] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew, *Taschenbuch der Mathematik*, 18, 297 (1979)